



Europäisches  
Patentamt  
European Patent  
Office  
Office européen  
des brevets

Claims of WO9945069

Print

Copy

Contact Us

Close

## Result Page

Notice: This translation is produced by an automated process; it is intended only to make the technical content of the original document sufficiently clear in the target language. This service is not a replacement for professional translation services. The esp@cenet® Terms and Conditions of use are also applicable to the use of the translation tool and the results derived therefrom.

< RTI ID=20.1> Patentansprüche < /RTI> 1. Thermoplastische Formmassen, enthaltend als wesentliche Komponenten

A) 15 bis 84,5 < RTI ID=20.2> Gew.-% < /RTI> a thermoplastic polyamide,

B) 15 to 84.5 < RTI ID=20.3> Gew. - % < /RTI> a polyphenylene ether,

C) 0,5 to 10 < RTI ID=20.4> Gew. - % < /RTI> Kaolinite, Dicksit, NAK-guessed/advised, Halloysit,

Wollastonite, Enstatit, Diopsit or Spodumen,

D) 0 to 20 < RTI ID=20.5> Gew. - % < /RTI> at least the Polyphenylenether phase < RTI ID=20.6> schlagzähmodifizierenden < /RTI> Polymers,

E) 0 to 10 < RTI ID=20.7> Gew. - % < /RTI> at least the PP phase < RTI ID=20.8> schlagzähmodifizierenden < /RTI> Polymers,

F) 0 to 20 < RTI ID=20.9> Gew. - % < /RTI> eines < RTI ID=20.10> Flammenschutzmittels, < /RTI>

G) 0 to 30 < RTI ID=20.11> Gew. - % < /RTI> glass or carbon fibers, coals stoffibrillen, < RTI ID=20.12> Soot, < /RTI> Glass balls or cut glass and

H) 0 to 10 Gew. - % further additives or Verarbeitungs< RTI ID=20.13> hilfsmittel. < /RTI>

2. Thermoplastic molding materials according to requirement < RTI ID=20.14> 1, < /RTI> thus gekennzeichnet it draws that it

A) 20 to 70 < RTI ID=20.15> Gew. - % < /RTI> a thermoplastic polyamide,

B) 20 bis 70 Gew.-% eines Polyphenylenethers,

C) 1,0 to 8,0 < RTI ID=20.16> Gew. - % < /RTI> Kaolinite or wollastonite,

D) 2,5 to 20 < RTI ID=20.17> Gew. - % < /RTI> at least the Polyphenylenether phase < RTI ID=20.18>

schlagzähmodifizierenden < /RTI> Polymers,

E) 0 bis 8 Gew.-% mindestens eines die Polyamidphase schlag zähmodifizierenden Polymeren,

F) 1 bis 15 < RTI ID=20.19> Gew.-% < /RTI> a flame retardant,

G) 0 bis 20 < RTI ID=20.20> Gew.-% < /RTI> glass or carbon fibers, coals stoffibrillen, soot, glass spheres or cut glass and

H) 0 to 5 < RTI ID=21.1> Gew. - % < /RTI> further additives or Verarbeitungs< RTI ID=21.2> hilfsmittel < /RTI> contained, whereby the sum of the Gew. - % of the components A) - H) 100 ergibt.

3. Thermoplastische Formmassen nach den Ansprüchen 1 oder 2, da durch gekennzeichnet, daß Polyamide mit einem Aminoend gruppengehalt im Bereich von 40 bis 80 < RTI ID=21.3> Req/g < /RTI> used who that.

4. Thermoplastic moulding compositions after the claims 1 to 3, there by characterized, < RTI ID=21.4> dass < /RTI> Polyamide mit einer Restfeuchte, bestimmt nach dem Dampfdruckverfahren < RTI ID=21.5> gemäß < /RTI> ISO 960 D, bran more ner 0.4 < RTI ID=21.6> % < /RTI> used become.

▲ top 5. Thermoplastic one after molding materials < RTI ID=21.7> Ansprüchen < /RTI> 1 bis 4, da durch gekennzeichnet, < RTI ID=21.8> dass < /RTI> as component B) Poly used becomes.

6. Thermoplastic moulding compositions after < RTI ID=21.9> Ansprüchen < /RTI> 1 to 5, there by characterized, daß the component C) in form used coated with size materials becomes.

7. Use in accordance with moulding compositions < RTI ID=21.10> Ansprüchen < /RTI> 1 to 6 to Herstellung von < RTI ID=21.11> Formkörpern. < /RTI>

8. < RTI ID=21.12> Moulding, < /RTI> erhältlich aus den thermoplastischen Formmassen gemäß den < RTI ID=21.13> Ansprüchen < /RTI> 1 to 6 as essential component.



Europäisches  
Patentamt  
European Patent  
Office  
Office européen  
des brevets

Description of WO9945069

Print

Copy

Contact Us

Close

## Result Page

Notice: This translation is produced by an automated process; it is intended only to make the technical content of the original document sufficiently clear in the target language. This service is not a replacement for professional translation services. The esp@cenet® Terms and Conditions of use are also applicable to the use of the translation tool and the results derived therefrom.

Polyamid/Polyphenylenether-Formmassen mit mineralischen Füll<RTI ID=1.1>stoffen</RTI> Description the instant invention concerns thermoplastic moulding compositions, contained as essential components <RTI ID=1.2> A) </RTI> 15 to 84.5 <RTI ID=1.3> Gew. - % </RTI> a thermoplastic polyamide, B) 15 to 84.5 <RTI ID=1.4> Gew. - % </RTI> a polyphenylene ether, C) 0.5 to 10 <RTI ID=1.5> Gew. - % </RTI> Kaolinite, Dickit, NAK-guessed/advised, Halloysit, Wollastonite, Enstatit, Diopsit or Spodumen, D) 0 to 20 Gew. - % at least the Polyphenylenetherphase tough polymers, E) 0 to 10 <RTI ID=1.6> Gew. - % </RTI> at least the PP phase <RTI ID=1.7> schlagzäh </RTI> modifying polymers, F) 0 to 20 <RTI ID=1.8> Gew. - % </RTI> one <RTI ID=1.9> Flame retardant, </RTI> G) 0 to 30 <RTI ID=1.10> Gew. - % </RTI> glass or carbon fibers, coals stoffibrillen, <RTI ID=1.11> Soot, </RTI> Glaskugeln oder Schnittglas und H) 0 bis 10 Gew.-% weitere Zusatzstoffe oder <RTI ID=1.12> Verarbeitungshilfs-</RTI> mittel.

The other the invention concerns the use of these moulding compositions to the preparation of <RTI ID=1.13> Mouldings, </RTI> in particular body construction units. In addition the invention concerns the obtained Form<RTI ID=1.14> körper.</RTI>

Blends on the basis of polyamides and polyphenylene ethers are <RTI ID=1.15> für</RTI> <RTI ID=1.16> vielfältige</RTI> Applications known. <RTI ID=1.17> grosse</RTI> application technology interest at this dazzling class based on the fact among other things that the individual components in its advantageous properties very good < itself; RTI ID=1.18> ergänzen.</RTI> During thermoplastic Polyphenylenetherpolymerisate and. A. over a relative good <RTI ID=1.19> Wärmeform </RTI> <RTI ID=1.20> beständigkeit</RTI> and <RTI ID=1.21> Dimensional stability, </RTI> however <RTI ID=1.22> über</RTI> a bad <RTI ID=1.23> Lösungsmittelbeständigkeit</RTI> and an high melt viscosity <RTI ID=1.24> order, </RTI> weisen Polyamidthermoplaste eine gute <RTI ID=1.25> Lösungsmittelbeständigkeit</RTI> and a good processability up.

Polyamides < however weak points with; RTI ID=1.26> Wärmeform </RTI> stability and the dimensional stability. Despite the positive Properties of polyamide/Polyphenylenetherblends are these usually still insufficient for many applications regarding <RTI ID=2.1> Dimensional stability, </RTI> <RTI ID=2.2> Wärmeformbeständigkeit</RTI> and stiffness. This <RTI ID=2.3> Mängel</RTI> attempted one for example thereby to repair, <RTI ID=2.4> dass</RTI> man das Blendmaterial mit anorganischen <RTI ID=2.5> Füllstoffen</RTI> staggered. Blends with fibrous or with inorganic fillers become the example in the WHERE 85/5372, EP-A 0,260,123, WHERE 87/5304, EP-A 0,046,040, WHERE 86/2086 or DE-A 34 43 154 described.

In accordance with the EP-A 0,375,177 polyamide/Polyphenylenethermischung is < for example talc with a particle size of 5,0 µm or less, with heating on; RTI ID=2.6> 300 C</RTI> <RTI ID=2.7> über</RTI> a period of 2 hours a weight loss of maximum 0.2 <RTI ID=2.8> Gew. - % </RTI> shows, added, around to molding materials with improved dimensional stability, <RTI ID=2.9> Oberflächenbeschaffenheit</RTI> and more improved <RTI ID=2.10> Lösungsmittelbe </RTI> <RTI ID=2.11> ständigkeit</RTI> to arrive. However losses leave themselves with <RTI ID=2.12> Zä </RTI> higkeitenverhalten even with only small ones <RTI ID=2.13> Füllstoffmengen</RTI> do not avoid. With rising <RTI ID=2.14> Füllstoffgehalt</RTI> takes <RTI ID=2.15> Schlagzähig </RTI> keit rapid off. Further of disadvantage is <RTI ID=2.16> dass</RTI> with rising <RTI ID=2.17> Füllstoffanteil</RTI> <RTI ID=2.18> Wärmeformbeständigkeit</RTI> <RTI ID=2.19> increases, </RTI> simultaneous <RTI ID=2.20> Schlagzähigkeit</RTI> however strong <RTI ID=2.21> decreases, </RTI> although known is, <RTI ID=2.22> dass</RTI> inorganic fillers such as talc the impact resistance less strong affect than <RTI ID=2.23> Faserfüllstoffe.</RTI> In this connection it is not particularly favourably, <RTI ID=2.24> dass</RTI> only with rising <RTI ID=2.25> Füllstoffanteil</RTI> an improved dimensional stability is registered.

It <RTI ID=2.26> wäre</RTI> thus desirably, to polyamide/Polyphenylenether moulding compositions fall back too <RTI ID=2.27> can, </RTI> already with small < itself; RTI ID=2.28> Füllstoffgehalten</RTI> distinguish by a good dimensional stability.

The instant invention was the basis therefore the object, thermoplastic moulding compositions on the basis from polyamide and polyphenylene ethers to <RTI ID=2.29> Verfügung</RTI> to place, the described disadvantages not or only to decreased extent exhibit and already with small <RTI ID=2.30> Füllstoffgehalten</RTI> <RTI ID=2.31> über</RTI> a good dimensional stability <RTI ID=2.32> order, </RTI> without showing losses with the thermostability or the toughness.

The Initially described thermoplastic molding materials were found accordingly. Further the use of these moulding compositions was < to the preparation by mouldings, in particular of; RTI ID=2.33> grossfläch </RTI> chigen body outer parts found. <RTI ID=2.34> Ausserdem</RTI> the obtained were <RTI ID=2.35> Formkörper</RTI> found.

Particularly preferred is such thermoplastic moulding compositions, A) 20 to 70 Gew. - % of a thermoplastic polyamide, B) 20 to 70; RTI ID=3.1> Gew. - % </RTI> a polyphenylene ether, C) 1.0 to 8.0 <RTI ID=3.2> Gew. - % </RTI> Kaolinite or wollastonite, D) 2.5 to 20 <RTI ID=3.3> Gew. - % </RTI> at least the Polyphenylenetherphase tough polymers, E) 0 to 8 <RTI ID=3.4> Gew. - % </RTI> at least the PP phase <RTI ID=3.5> schlagzäh </RTI> modifying polymers, F) 1 to 15 <RTI ID=3.6> Gew. - % </RTI> one <RTI ID=3.7> Flame retardant, </RTI> G) 0 to 20 Gew. - % glass or carbon fibers, coals stoffibrillen, <RTI ID=3.8> Soot, </RTI> Glass spheres or cut glass and H) 0 to 5 <RTI ID=3.9> Gew. - % </RTI> other additives or processing auxiliary means contain, whereby the sum <RTI ID=3.10> Gew. - % </RTI> the components A) - H) 100 results in.

As component A) the polyamides contained in the thermoplastic moulding compositions are actual known and cover the semicrystalline and

amorphous resins with molecular weights (weight average values) of at least 5000, those < RTI ID=3.11> gewöhnlich< /RTI> nylon to be called. Such polyamides and methods to their preparation are z. B. in the American patent specifications US-2,071,250, US-2,071,251, US-2,130,523, US-2,130,948, < RTI ID=3.12> US-2,241,322, < /RTI> US-2,312,606 and US-3,393,210 described.

The PP < RTI ID=3.13> können< /RTI> z. B. by condensation of äquimolarer quantities of a satisfied or an aromatic dicarbonic acid with 4 to 12 carbon atoms, for example < RTI ID=3.14> Adipic acid, < /RTI> < RTI ID=3.15> Sebacic acid, < /RTI> < RTI ID=3.16> Azelaic acid, < /RTI> 1,12-Dodekandicarbonsäure, Terephthal-und Iso<RTI ID=3.17>phthalsäure,</RTI> with a satisfied or aromatic diamine, which < to 14 carbon atoms; RTI ID=3.18> exhibits, < /RTI> thus for example 1,6-Diaminohexan, 1,4-Diaminobutan, m-Xyldiamin, the (4-aminophenyl) methane, < RTI ID=3.19> The (4-aminocyclohexyl) < /RTI> methane, 2,2-Di (4-aminophenyl) propane or 2,2-Di (4-aminocyclohexyl) propane, to be received. Des weiteren <RTI ID=3.20>können</RTI> suitable PP by condensation < RTI ID=3.21> Of Aminocarbonsäuren< /RTI> or by polyaddition of Lactams under < RTI ID=4.1> Ringöffnung< /RTI> too for example Polycaprolactam (bspw.

Nylon 6) or Polylauryllactam to be manufactured.

Examples < RTI ID=4.2> für< /RTI> suitable PP are Polycaprolactam (nylon 6), < RTI ID=4.3> Polyhexamethylenadipinsäureamid< /RTI> (Nylon 66), Polyhexamethylenazelaissäureamid (nylon 69), < RTI ID=4.4> Polyhexamethylensebacinsäureamid< /RTI> (Nylon 610), < RTI ID=4.5> Polyhexamethylenododecandisäureamid< /RTI> (Nylon 612), through < RTI ID=4.6> Ringöffnung< /RTI> from lactams of obtained polyamides such as Polycaprolactam, < RTI ID=4.7> Polylaurinsäurelactam, < /RTI> furthermore < RTI ID=4.8> Poly-11-aminoundecan-< /RTI> acid and a PP out (< RTI ID=4.9> (p-aminocyclohexyl) - methane und< /RTI> Dodecandisäure.

It is also < RTI ID=4.10> possible, < /RTI> to use in accordance with the invention of PP, which were manufactured by Copolykondensation by two or more above-mentioned polymers or their components, z. B.

Copolymers out < RTI ID=4.11> Adipic acid, < /RTI> < RTI ID=4.12> Isophthalsäure< /RTI> or terephthalic acid and hexamethylenediamine or copolymers from caprolactams, < RTI ID=4.13> Terephthalsäure< /RTI> and hexamethylenediamine. Preferred linear PP with a melting point are < RTI ID=4.14> über< /RTI> 200 C.

Bevorzugte Polyamide sind <RTI ID=4.15>Polyhexamethylenadipinsäureamid,</RTI> Polyhexamethylensebacinsäureamid and Polycaprolactam as well as PP 6/6T and PP 66/T, particularly preferentially are Polyhexa< RTI ID=4.16> methylenadipinsäureamid.< /RTI>

The polyamides point generally one < RTI ID=4.17> Viskositätszahl< /RTI> within the range of 90 to 350 ml/g up, certain according to ISO 307 at 0.5 gew. - % Igen < RTI ID=4.18> Lösung< /RTI> in 96% of Iger sulfuric acid with < RTI ID=4.19> 23 C.< /RTI> This usually corresponds molecular weight from approximately 15,000 to 45,000 g/mol. Polyamides with a viscosity within the range of 110 to 240 ml/g become preferred used.

< RTI ID=4.20> Außerdem< /RTI> still polyamides mentioned are, the z. B. by condensation of 1,4-Diaminobutan with adipic acid of bottom elevated temperature available are (Polyamid-4,6). Herstellungsverfahren für Polyamide dieser Struktur sind z. B. into the EP-A 38,094, EP-A 38,582 and EP-A 39,524 described. Polyamid-4,6 as well as polyamide 6/6T and polyamide 66/T become preferred 0.5 Gew small with a tri amine content. - %, related to the component A), used.

Mixtures of different PP as well as PP copolymers are likewise suitable.

The portion of the PP A) at the molding materials according to invention amounts to 15 to 84.5, preferably 20 to 70 and in particular 25 to 60 Gew. - %.

#### ▲ top

In a preferential < RTI ID=5.1> Ausführungsform< /RTI> < RTI ID=5.2> erfindungsgemässen< /RTI> thermoplastic molding materials are < in particular PP with a Aminoendgruppengehalt within the range of 40 to 80, preferentially from 40 to 70 and from 45 to 65; RTI ID=5.3> Req/g< /RTI> used. Further bevor< RTI ID=5.4> such PP with a residual moisture of small 0.4%< are zugt; /RTI> in particular small 0.25 < RTI ID=5.5> %.< /RTI> The residual moisture content leaves itself to z. B. after the steam pressure procedure (ISO 960 D) or the electronic controlled Karl Fischer titration (ISO design 1988) be< RTI ID=5.6> stimmen.< /RTI>

Als Komponente B) wird erfindungsgemäss wenigstens ein an sich bekannter Polyphenylenether (PPE) verwendet, wobei es sich um Homo-, Co-oder Pfropf/copolymer handeln kann. In particular are this compounds on basis of substituted, especially disubstituierten polyphenylene ethers, whereby the Ethersauerstoff is unit to the benzene core of the adjacent unit bonded. < RTI ID=5.7> Vorzugsweise< /RTI> become used in 2-und/oder 6-Stellung the oxygen atom substituted polyphenylene ethers. As examples < RTI ID=5.8> für< /RTI> Substituents are halogen atoms, like chlorine or bromine, and alkyl radicals with 1 to 4 carbon atoms, which preferably < none; RTI ID=5.9> A-ständiges< /RTI> , z exhibit tertiary hydrogen atom. B.

Methyl ethyl, Propyl or Butylreste, to call. The alkyl radicals < RTI ID=5.10> können< /RTI> again by halogen atoms, like chlorines or bromine, or by an hydroxyl group substituted its. Other examples < RTI ID=5.11> möglicher< /RTI> Substituenten sind Alkoxyreste, vorzugsweise mit bis zu 4 Kohlenstoffatomen, wie Methoxy, Ethoxy, n-Propoxy und n-Butoxy, oder gegebenenfalls durch Halogenatome und/oder Alkylgruppen substituierte Phenylreste. Likewise suitably copolymers different phenols are, for example copolymers of 2,6-Dimethylphenol and 2,3,6-Trimethylphenol. Of course < RTI ID=5.12> können< /RTI> also mixtures of various polyphenylene ethers used become. The Polyphenylenether B) is < in; RTI ID=5.13> erfindungsgemässen< /RTI> Moulding compositions in an amount from 15 to 84.5, preferred 20 to 70 and in particular 25 to 60 < RTI ID=5.14> Gew. - %< /RTI> contained. Suitable polyphenylene ethers and methods to their preparation become the example in the US patent specifications US-3,306,874, US 3.306.875, US 3.257.357 and US 3.257.358 described.

Examples < RTI ID=5.15> für< /RTI> suitable polyphenylene ethers are < Poly Poly; RTI ID=5.16> (2,6-diphenyl-1,4-phenylenether), < /RTI> Poly (2,6-dimethoxy-1,4-phenylenether), Poly (2,6-diethoxy-1,4-phenylenether), Poly (2-methoxy-6-ethoxy-1,4-phenylenether), Poly < RTI ID=6.1> (2-ethyl 6-stea-< /RTI> ryloxy-1,4-phenylenether), < RTI ID=6.2> Poly (2, 6-dichlor-1,4-phenylenether), < /RTI> Poly (2-methyl-6-phenyl-1,4-phenylenether), Poly (2,6dibenzyl-1,4-phenylenether), Poly (2-ethoxy-1,4-phenylenether), Poly (2-chlor-1,4-phenylenether), Poly (2,5-dibrom-1,4-phenylen ether). Preferred ones become polyphenylene ether used, with which the substituents are

alkyl radicals with 1 to 4 carbon atoms; as particularly been suitable Poly (2,6-dialkyl-1,4-phenylene) proved, like Poly (2,6-dimethyl-1,4-phenylene), Poly Poly (2-methyl-6-ethyl-1,4-phenylene), Poly (2-methyl-6-propyl-1,4-phenylene), Poly or Poly (2-ethyl-6-propyl-1,4-phenylene). Particularly preferred becomes Poly (2,6-dimethyl-1,4-phenylene) used, in particular such with an intrinsic viscosity within the range of 0,30 to 0.60 dl/g (measured in toluene with 25 C and a concentration of 0,6 g/100 ml).

By Polyphenylene in the sense of the invention also such are to be understood, those with monomers, how < RTI ID=6.3> Fumaric acid, < RTI ID=6.4> Citric acid, < RTI ID=6.4> Maleinsäure < RTI ID=6.5> Maleinsäureanhydrid < RTI ID=6.6> are modified. < RTI ID=6.6> Üblicherweise < RTI ID=6.7> if the polyphenylene ether becomes at least by incorporation a Carbonyl, < RTI ID=6.7> Carbonic acid, < RTI ID=6.8> Säureanhydrid, < RTI ID=6.9> amide, < RTI ID=6.10> Acidic imide, < RTI ID=6.10> Carbonic acid ester, < RTI ID=6.11> Carboxylate, revision modification NO, hydroxyl, Epoxi, Oxazolin, urethane, urea, lactam or group of halogen benzylenes of modified, then < RTI ID=6.11> dass < RTI ID=6.12> a sufficient compatibility with second polymers the mixture, which PP < RTI ID=6.12> gewährleistet < RTI ID=6.13> is. Such Polyphenylene is and. A. in the WO-A 86/02086, WO-A-87/00540, EP-A-0 222,246, EP-A-0 223,116 and EP-A-0 254,048 described.

The modification is < RTI ID=6.13> generally by conversion of a polyphenylene ether with one; RTI ID=6.13> Modifier, < RTI ID=6.14> that at least one of the groups specified above < RTI ID=6.14> contains, < RTI ID=6.15> Lösung < RTI ID=6.16> (WO-A 86/02086), in < RTI ID=6.16> wäbriker < RTI ID=6.17> Dispersion, in a gas phase process (EP-A-25 200) or preferred in the melt, if necessary in presence of suitable vinylaromatic polymers or < RTI ID=6.17> Schlagzähmodifizieren, < RTI ID=6.18> conducted, < RTI ID=6.19> whereby radical starter present its < RTI ID=6.19> können. < RTI ID=6.19>

Particularly suitable modifiers are < RTI ID=6.20> Maleic acid, < RTI ID=6.21> Methyl < RTI ID=6.22> maleic acid, < RTI ID=6.22> Itaconic acid, < RTI ID=6.23> Tetrahydrophthalsäure, < RTI ID=6.24> their anhydrides and imides, < RTI ID=6.24> Fumaric acid, < RTI ID=6.25> Mono-und diester of these acid ones, z. B. with C1-bis < RTI ID=6.25> C8-Alkanolen, < RTI ID=6.26> mono or this would dia-avoid < RTI ID=6.26> Säuren < RTI ID=6.27> like N-Phenylmaleinimid, Maleinhydrazid, the Säurechlorid of the Tri < RTI ID=6.27> mellthäureanhydrids, < RTI ID=6.28> Benzol-1,2-dicarbonsäureanhydrid-4-carbon < RTI ID=6.28> acid acetic anhydrid, < RTI ID=6.29> Chlorethanoylsuccinaaldehyd, Chlorformylsuccinaldehyd, < RTI ID=6.29> Zitronensäure < RTI ID=6.30> and < RTI ID=6.30> Hydroxysuccinsäure. < RTI ID=6.31> Preferred ones are particularly preferred as Modifier fumaric acid and citric acid, are < RTI ID=7.1> Citric acid, < RTI ID=7.2> anhydrous in particular < RTI ID=7.2> lemon < RTI ID=7.2> acidic.

The component B) can < RTI ID=7.3> ausschliesslich < RTI ID=7.4> from not modified polyphenylene ether, < RTI ID=7.4> ausschliesslich < RTI ID=7.5> of modifiziertem polyphenylene ether or of any mixture of not modifiziertem and modified polyphenylene ether consist. Regarding the physical properties of the polyphenylene ethers become preferred such used, which < RTI ID=7.5> an average molecular weight; RTI ID=7.5> Mw < RTI ID=7.6> (Weight averages) from 8000 to 70000, preferably 12000 to 60000 and in particular 25000 to 50000 g/mol, exhibit. This corresponds to an intrinsic viscosity from approximately 0.18 to 0.9, preferably from 0,25 to 0.7 and in particular from 0,39 to 0.6 dl/g, measured in chloroform with 25 C according to DIN 53,726.

The determination of the molecular weight distribution effected generally by means of < RTI ID=7.6> Gelpermeationschromatographie < RTI ID=7.7> (Shodex Trennsäule < RTI ID=7.8> 0.8 x 50 cm of the type A 803, A 804 and A 805 with tetrahydrofurane (THF) as Elutionsmittel with < RTI ID=7.8> Ambient temperature). < RTI ID=7.9> Lösung < RTI ID=7.9> the PPE samples in THF made bottom pressure with < RTI ID=7.10> 110 C, < RTI ID=7.11> whereby 0.16 ml 0.25 < RTI ID=7.11> gew. - % igen Lösung < RTI ID=7.12> are injected. The detection made generally with one < RTI ID=7.12> W-Detektor. < RTI ID=7.13> Säulen < RTI ID=7.13> werden mit PPE-Proben geeicht, deren absolute Molekulargewichtsverteilungen < RTI ID=7.14> über < RTI ID=7.14> a GPC laser light faithful combination certain are < RTI ID=7.15> können. < RTI ID=7.15>

Purpose Kompatibilisierung of polyamide and polyphenylene ether one can likewise, as in WHERE 85/05372 or EP-A 0,024,120 described, mixtures of these polymers with functionalised < RTI ID=7.16> ungesättigten < RTI ID=7.16> organic compounds shift.

Under revealing the available invention fall < RTI ID=7.17> demgemäss < RTI ID=7.18> of course also mixtures from polyamide and polyphenylene ethers, which one < RTI ID=7.18> ungesättigte < RTI ID=7.19> organic compound with at least one < RTI ID=7.19> Carbonic acid, < RTI ID=7.20> Anhydride, amide, imide, ester, Aminoder < RTI ID=7.20> Hydroxyfunktionalität < RTI ID=7.21> one added. Preferred ones are < RTI ID=7.21> organic compounds with at least one; RTI ID=7.21> Carbonic acid, < RTI ID=7.22> Esteroder amide functionality. The organic compounds mentioned other < RTI ID=7.22> über < RTI ID=7.23> mindestens eine ungesättigte funktionelle Einheit. By this both carbon/carbon triple bonds and also two-fold connections is to be understood, whereby the latter < RTI ID=7.23> finalconstantly, < RTI ID=7.24> two, three or quadruple substituted its < RTI ID=7.24> können. < RTI ID=7.25> As suitable compounds z come. B. in question citric acid, < RTI ID=7.25> Äpfelsäure < RTI ID=7.26> or < RTI ID=7.26> Agaridinsäure < RTI ID=7.27> in anhydrous as well as in hydrated form, Acetylziträt, Mono-und/or Distearylziträt, N, < RTI ID=7.27> N' Diethylzitrönsäureamid, < RTI ID=7.28> N, < RTI ID=7.28> N' Dipropylzitrönsäureamid, < RTI ID=7.29> N-Phenylzitrönsäureamid, < RTI ID=7.30> N-Dodecylzitrönsäureamid, < RTI ID=7.31> N, < RTI ID=7.31> N' Dido < RTI ID=7.32> decylzitrönsäureamid or < RTI ID=7.32> N-Dodecylapfelsäureamid. < RTI ID=8.1> Under unge < RTI ID=8.1> satisfied organic compounds with Carbonsäurefunktionalität < RTI ID=8.2> fall in particular also their salts. The ammonium salts as well as preferred Alkali-und of alkaline earth metal salts are exemplary as < RTI ID=8.2> Calciumziträt < RTI ID=8.3> or < RTI ID=8.3> Kaliumziträt < RTI ID=8.3> as well as Calcium-und of potassium salts of malic acid mentioned.

The aforementioned funktionalisierte < RTI ID=8.4> ungesättigte < RTI ID=8.5> one sets organic compound preferably in amounts within the range of 0,05 to 4 < RTI ID=8.5> Gew. - % < RTI ID=8.5> related to the total weight of the thermoplastic moulding compositions according to invention.

When component C) the moulding compositions according to invention contain 0.5 to 10, of preferred 1 to 8, particularly preferred 1.5 to 6.5 and in particular 2 to 6 < RTI ID=8.6> Gew. - % < RTI ID=8.6> an Kaolinit, Dickit, Nakrit, Halloysit, Wollastonit, insbesondere < RTI ID=8.7> ss-Wollastonit, < RTI ID=8.7> Enstatit, Diopsit or Spodumen. Kaolinit and Wollastonit are particularly preferential.

Unter Kaolinit im Sinne der vorliegenden Erfindung wird auch Kaolin mit einem Gesamtanteil an Glimmer, Feldspat und/oder Quarz nicht grösser als 10 < RTI ID=8.8> Gew.-%, < RTI ID=8.8> related to the used amount at kaolin, understood. The minerals Kaolinit, Dickit, NAK-guesses/advised and Halloysit are used preferentially in calcinierter form, D. h. these fabrics are < RTI ID=8.9> one; RTI ID=8.9> Annealing process, < RTI ID=8.10> for example with approximately < RTI ID=8.10> 800 C, < RTI ID=8.11> over a period of several hours submitted, before it < RTI ID=8.11> für < RTI ID=8.12> die Herstellung der erfindungsgemässen Formmasse eingesetzt werden. It < RTI ID=8.12> können < RTI ID=8.13> also arbitrary mixtures of the aforementioned minerals used become, thus z. B. Kaolinite and < RTI ID=8.13> Ss-Wollastonit < RTI ID=8.13> or kaolinite and Enstatit.

Particularly preferred becomes those the bottom component C) falling compounds in coated form (?gecoatet?) used. < RTI ID=8.14> Für< /RTI> the coating knows in reasons on simple materials known from the glass fiber technology < RTI ID=8.15> zurückgegriffen< /RTI> become. Suitable simple materials are z. B. < RTI ID=8.16> wässrige< /RTI> < RTI ID=8.17> Strong emulsions, < /RTI> Schmier< RTI ID=8.18> yole, < /RTI> aqueous dispersions upper-flat-active substances as well as siliziumhaltige compounds such as Vinylsilane, Alkyltrimethoxysilane, Aminosilane or Trimethoxysilane. As particularly favourable Aminosilane proved. This < RTI ID=8.19> can, < /RTI> just as the aforementioned silane-simple, additional < also over urethane, acrylate or; RTI ID=8.20> Epoxyfunktionalitäten< /RTI> < RTI ID=8.21> verfügen.< /RTI> Likewise < RTI ID=8.22> können< /RTI> the silane-simple in the mixture with urethane, acrylate or epoxy functionalities contained compounds are present. With Aminosilanschichten treated mineral connections of the component C) are commercial available. With these sizes treated wollastonite or kaolinite knows z. B. über die Firma Quarzwerke oder die Firma ECC (Englisch China Clay) bezogen werden.

Sehr gute Resultate im Hinblick auf Dimensionsstabilität und < RTI ID=9.1>Wärmeformbeständigkeit< /RTI> become in particular achieved if Teilchen-bzw. Grain size of the used waddings not to high values < RTI ID=9.2> annimmt.< /RTI> Usually the compounds of the component become C) with upper Teilchen-bzw. Grain size < RTI ID=9.3> dg5%< /RTI> < 30 < RTI ID=9.4> FM, < /RTI> preferred < 20 < RTI ID=9.5> pm< /RTI> and in particular < 15 < RTI ID=9.6> jim< /RTI> used.

As mean grain size < RTI ID=9.7> d50%< /RTI> favorable-proves a value < 10 and < in particular; 5 < RTI ID=9.8> pm< /RTI> selected.

As < RTI ID=9.9> Schlagzähmodifizier< /RTI> < RTI ID=9.10> für< /RTI> the Polyphenylenetherphase (component D) is < RTI ID=9.11> schlagzähmodifizierende< /RTI> Rubbers in portions from 0 to 20, preferred 2.5 to 20 and preferably in portions from 4 to 15 Gew. - %, related to the total weight of the moulding composition, used.

Als Komponente D):< RTI ID=9.12>können< /RTI> natural and/or synthetic rubbers used become. Beside natural rubber are as Schlagzähmodifizier z. B. Polybutadiene, polyisoprene or copolymers of the butadiene and/or isoprene with styrene and other comonomers, which one < RTI ID=9.13> Glass transition temperature, < /RTI> certain after K. H. Illers and H. Breuer, colloid magazine 190 (1), 16-34 (1963), < RTI ID=9.14> of IOQoc< /RTI> to < RTI ID=9.15> +25 C, < /RTI> preferably bottom 0 C exhibit, suitable. < RTI ID=9.16> Ausserdem< /RTI> < RTI ID=9.17> können< /RTI> corresponding hydrogenated products used become.

Preferred one < RTI ID=9.18> Schlagzähmodifizier< /RTI> D) are block polymers, especially < RTI ID=9.19> two oder< /RTI> Three-block copolymers from Vinylaromaten and dienes.

< RTI ID=9.20> Schlagzähmodifizier< /RTI> this type are well-known. In the DE-AS 1,932,234, the DE-AS 2,000,118 as well as the DE-OS 2,255,930 is different constructed vinylaromatic and serving blocks of comprising elastomeric block copolymers described. The use of corresponding hydrogenated block copolymers in the mixture with the not hydrogenated preliminary stage as < if necessary; RTI ID=9.21> Schlagzähmodifizier< /RTI> for example described are in the DE-OS 2,750,515, DE-OS 2,434,848, DE-OS 3,038,551, EP-A-0 080,666 and WHERE 83/01254. On the disclosure above documents respect taken becomes hereby express. Into question come in this connection and. A. also hydrogenated styrene butadiene three-block copolymers (SEBS), as the commercial product < RTI ID=9.22> Kraton< /RTI> 1651, or hydrogenated styrene isopren Zweiblockcopolymer (September), as the commercial product < RTI ID=9.23> Kraton< /RTI> 1701 (both products of the companies Shell). Of course < RTI ID=9.24> können< /RTI> also mixtures of Zweiblock-und three-block copolymers used become.

As the PP phase < RTI ID=9.25> schlagzähmodifizierende< /RTI> Polymers (component E) come to the example of copolymers of the ethylene with propylene (EP-rubbers) as well as if necessary with a conjugated diene (of EPDM rubbers), whereby the ethylene content preferred 45 < and in special 50; RTI ID=10.1> Gew. - %< /RTI> (related to the component E) < RTI ID=10.2> amounts to < /RTI> in question. Derartige < RTI ID=10.3> Schlagzähmodifizier< /RTI> It are well-known why < RTI ID=10.4> für< /RTI> further details to the publication by Cartasegna in India rubber, rubber, plastics 39.1186-91 (1986) here is referred.

- Those < RTI ID=10.5> Zähigkeit< /RTI> von Polyamiden verbessernden Kautschuke weisen im allgemeinen einen elastomeren Anteil mit
- ▲ top einer Glastemperatur < RTI ID=10.6> kleiner-10 C,< /RTI> preferably < RTI ID=10.7> kleiner-30 C< /RTI> up and contain at least a functional group, which can react with the polyamide. Suitable functional groups are for example carbonic acid, < RTI ID=10.8> Carbonic acid-anhydride, < /RTI> < RTI ID=10.9> Carbonic acid ester, < /RTI> < RTI ID=10.10> carbonic acid < /RTI> amide, < RTI ID=10.11> Carbonic acid-imide, < /RTI> Revision modification NO, hydroxyl, epoxy, Urethan-und Oxazolinguuppen. As India rubbers, which < RTI ID=10.12> Zähigkeit< /RTI> from polyamides < RTI ID=10.13> Increase, < /RTI> the subsequent mentioned are for the example: EP-and/or EPDM rubbers, which became grafted with the managing functional groups. Geeignete Pffropfreagentien sind beispielsweise < RTI ID=10.14> Maleinsäureanhydrid,< /RTI> < RTI ID=10.15> Itaconic acid, < /RTI> < RTI ID=10.16> Acrylsäure,< /RTI> Glycidyl acrylate and glycidyl methacrylate. This monomers < RTI ID=10.17> können< /RTI> in the melt or in < RTI ID=10.18> Solution, < /RTI> if necessary in presence of a radical initiator such as cumene hydroperoxide, become grafted on which polymers. Further are copolymers of < RTI ID=10.19> A-Olefinen< /RTI> with (Meth) acrylates and/or vinyl esters mentioned. With the A-olefines it acts usually around monomers with 2 to 8 C-atoms, preferably ethylene and propylene. As comonomers have themselves alkyl acrylates or alkyl methacrylates, which of < itself; RTI ID=10.20> A1-< /RTI> koholen with < RTI ID=10.21> 1< /RTI> until 8 C-atoms, preferably from ethanol, Butanol or ethylhexanol derive, as well as reactive comonomers such as Acryl< RTI ID=10.22> acidic, < /RTI> < RTI ID=10.23> Methacrylsäure,< /RTI> < RTI ID=10.24> Maleic acid, < /RTI> < RTI ID=10.25> Maleinsäureanhydrid< /RTI> or Glycidyl (meth) acrylate and further < RTI ID=10.26> Vinyl ester, < /RTI> In particular vinyl acetate, when suitable proved. Mixtures of various comonomers < RTI ID=10.27> können< /RTI> likewise used becomes. As particularly suitable copolymers of the ethylene with ethyl or < themselves; RTI ID=10.28> Butyl< /RTI> acrylate and acrylic acid and/or maleic anhydride proved. Die Copolymeren < RTI ID=10.29> können< /RTI> In one < RTI ID=1 of a shell up, whereby the structure arises as a result of the order of the monomer addition. The soft ingredients are derived among other things from butadiene, isoprene, alkyl acrylates or alkyl methacrylates and if necessary other comonomers. As suitable Comonomere are here for example styrene, acrylonitrile and interlacing or graft-active monomers with more than a polymerizable double bond such as Diallylphthalat, Divinylbenzol, to call Butandiolidiacrylat or tri allyl (ISO) cyanogen urate. The hard ingredients are derived among other things from styrene, to ethyl styrene and their copolymers, whereby as comonomers acrylonitriles, methacrylonitrile and methyl methacrylate are to be preferably specified here.

Preferential core bowl grafting India rubbers contain a soft core and a hard bowl or a hard core, a first soft bowl and at least a further hard bowl. The incorporation of functional groups such as Carbonyl, < RTI ID=11.1> Carbonic acid, < /RTI> Säureanhydrid, < RTI ID=11.2> Acidic-amide, < /RTI> < RTI ID=11.3> Acidic-imide, < /RTI> < RTI ID=11.4> Carbonic acid ester, < /RTI> Revision modification NO, hydroxyl, Epoxi, < RTI ID=11.5> Oxazolin, < /RTI> Urethane, urea, lactam or groups of halogen benzylenes of made here preferably functionalised monomers with the polymerization of the last shell, suitable by the addition. Geeignete funktionalisierte Monomere sind beispielsweise < RTI ID=11.6> Maleinsäure,< /RTI> < RTI ID=11.7> Maleic anhydride, < /RTI> mono or diester < RTI ID=11.8> Maleic

acid, < RTI ID=11.9> Butyl (meth) acrylate; < RTI ID=11.10> Acrylic acid, < RTI ID=11.11> Glycidyl (meth) acrylate and Vinyloxazolin. The portion of monomers with functional groups < RTI ID=11.12> beträgt < RTI ID=11.13> generally 0.1 to 25 Gew. - %, preferably 0.25 to 15 Gew. - %, related to the total weight of the core bowl grafting india rubber. The weight ratio from soft to hard ingredients < RTI ID=11.14> beträgt < RTI ID=11.15> generally 1: 9 to 9: 1, preferred 3: 7 to 8: 2.

Such rubbers, which < RTI ID=11.16> Zähigkeit < RTI ID=11.17> von Polyamiden < RTI ID=11.18> erhöhen, < RTI ID=11.19> sind an sich bekannt und beispielsweise in der EP-A-0 208 187 beschrieben.

An other group of suitable < RTI ID=11.20> Schlagzähmodifiern < RTI ID=11.21> are thermoplastic polyester-elastomeric. By polyester elastomers segmented Copolyetherester is understood which langkettige segments, which usually etherglykolen themselves from Poly (alkyls), and kurzketige segments, which are derived from low-molecular Diolen and dicarbonic acids, contain. Derartige Produkte sind an sich bekannt und in der Literatur, zum Beispiel in der US 3,651,015, beschrieben. Also in the commerce corresponding products the bottom designations are < RTI ID=11.22> Hytrel < RTI ID=11.23> (You Pont), < RTI ID=11.24> Arnitel < RTI ID=11.25> (Akzo) and < RTI ID=11.26> Pelprene S < RTI ID=11.27> erhältlich. < RTI ID=11.28>

< RTI ID=12.1> Of course also mixtures can verschiedener < RTI ID=12.2> Kautschuke eingesetzt werden.

< RTI ID=12.3> erfindungsgemäßen < RTI ID=12.4> Moulding compositions < RTI ID=12.5> können < RTI ID=12.6> further flame retardant F) in amounts from 0 to 20 < RTI ID=12.7> Gew. - < RTI ID=12.8> %, < RTI ID=12.9> preferred from 1 to 15 Gew. - < RTI ID=12.10> %, related to that total weight; < RTI ID=12.11> erfindungsgemäßen < RTI ID=12.12> Molding material, contain.

All well-known come < RTI ID=12.13> Flammenschutzmittel < RTI ID=12.14> in consideration, z. B.

Polyhalogendiphenyl, Polyhalogendiphenylether, Polyhalogenphthalsäure and their derivatives, Polyhalogenoligo and polycarbonates, whereby the appropriate < RTI ID=12.15> Bromverbindungen < RTI ID=12.16> particularly effective is.

Examples < RTI ID=12.17> hierfür < RTI ID=12.18> sind Polymere des 2,6,2', 6'-Tetrabrombisphenols A der < RTI ID=12.19> Tetrabromphthalsäure, < RTI ID=12.20> the 2,6-Dibromphenols and 2,4,6-Tribromphenols and their derivatives.

A preferred < RTI ID=12.21> Flammenschutzmittel < RTI ID=12.22> F) is elemental phosphorus. Usually can the elemental phosphorus with z. B. Polyurethanes or other aminoplastics to be phlegmatisiert or geccoatet.

< RTI ID=12.23> Außerdem < RTI ID=12.24> concentrates of red phosphorus are z. B. in a polyamide, elastomers or a polyolefin suitable.

Particularly preferred is < RTI ID=12.25> 1,2,3,4,7,8,9,10,13,13,14,14-Dodeca- < RTI ID=12.26> chloro-1,4,4a, < RTI ID=12.27> 5,6,6a, < RTI ID=12.28> 7,10,10a, 11,12,12a-dodecahydro-1,4: 7,10-dimethanodibenzo (A, e) - cyclooctan < RTI ID=12.29> (Dechloraneplus, < RTI ID=12.30> Occidental Chemical Corp.), if necessary together with a Synergisten, z. B. Antimony trioxide.

Other phosphorus compounds like organic < RTI ID=12.31> Phosphoric acid, < RTI ID=12.32> Phosphonates, Phosphinite, phosphine oxides, phosphines, phosphites or phosphates are likewise preferred. As example Triphenylphosphinoxid is mentioned. This can be used alone or mixed with hexadecimale bromine benzene or a chlorinated Biphenyl or a red phosphorus and, alternatively, antimony tri oxide.

Typical preferential phosphorus connections are such the following general formula

EMI12.1

where Q < RTI ID=12.33> für < RTI ID=12.34> Hydrogen or < RTI ID=12.35> für < RTI ID=12.36> resembles or different hydrocarbon remainders or halogen hydrocarbon remainder, as alkyl, Cycloalkyl, aryl, alkyl-substituted aryl and aryl if substituted alkyl stands, presupposed, < RTI ID=13.1> dab < RTI ID=13.2> at least one < RTI ID=13.3> für < RTI ID=13.4> Q of standing remainders an aryl radical is. Examples of such suitable phosphates are z. B. the subsequent: Phenylbis(dodecyl)phosphat, Phenylbis(neopentyl)phosphat, Phenylethylenhydrogenphosphat, < RTI ID=13.5> Phenyl to (3.5.5' - trimethylhexyl)phosphat, < RTI ID=13.6> Ethyldiphenylphosphat, 2-Ethylhexyldi (p-tolyl) phosphate, Diphenylhydrogenphosphat, < RTI ID=13.7> Until (2-ethylhexyl) < RTI ID=13.8> phenylphosphat, trichloroethylene (nonylphenyl) phosphate, Phenylmethylhydrogenphosphat, which (dodecyl) - ptolylphosphat, Tricresylphosphat, Triphenylphosphat, Dibutylphenylphosphat and Diphenylhydrogenphosphat. The preferred phosphates are such, with which each Q is aryl. At most preferred phosphate is triphenyl phosphate. Further the combination of Triphenylphosphat with red phosphorus is preferential.

Preferred ones are further also Hydrochinon or Resorcindiphenyldiphosphate as well as compounds, those by reaction of bisphenol A and/or S with triphenyl phosphate bottom cousin catalysis obtained become.

Suitably are also mixtures of Phosphinoxiden with phosphates.

Exemplary ones are mixtures from Triphenylphosphinoxid triphenyl phosphate or Trixylylphosphat, Tricyclohexylphosphinoxid and triphenyl phosphate, trichloroethylene (cyanoethyl) phosphinoxid and triphenyl phosphate, < RTI ID=13.9> Trichloroethylene (n-octyl) - phosphinoxid < RTI ID=13.10> and triphenyl phosphate mentioned.

As < RTI ID=13.11> Flammenschutzmittel < RTI ID=13.12> are < RTI ID=13.13> schließlich < RTI ID=13.14> also such compounds suitable, which contain phosphorus nitrogen connections, like Phosphonnitrilchlorid, < RTI ID=13.15> Phosphoric acid ester amides, < RTI ID=13.16> Phosphorsäure- < RTI ID=13.17> esteramine, < RTI ID=13.18> Phosphorsäureamide, < RTI ID=13.19> Phosphonic acid amides, < RTI ID=13.20> Phosphin < RTI ID=13.21> acidic amides, < RTI ID=13.22> Trichloroethylene (aziridinyl) - phosphinoxid or Tetrakis (hydroxymethyl) < RTI ID=13.23> phosphoniumchlorid. < RTI ID=13.24> These inflame-inhibitive additives are to a large extent in the commerce < RTI ID=13.25> erhältlich. < RTI ID=13.26>

Further one, halogenhaltige < RTI ID=13.27> Flammenschutzmittel < RTI ID=13.28> are Tetrabrombenzol, Hexachlorbenzol and hexadecimale bromine benzene as well as halogenated polystyrenes and polyphenylene ether.

Also in the DE-A 19 46 924 described halogenated Phthalimide < RTI ID=13.29> können < RTI ID=13.30> likewise used becomes. From these in

particular N < RTI ID=13.17> NT-Ethylenbistetraabromphthalimid < /RTI> Importance obtained.

Further < RTI ID=13.18> können < /RTI> when flame retardants become polymere Siloxanverbindungen or boron compounds, like in the EP-A 0,714,951 described, used. As < RTI ID=13.19> siliziumhaltige < /RTI> < RTI ID=13.20> Flammenschutzmittel < /RTI> come such from the group of the Siloxanocopolymer, to the example Poly phenylenether/or Polyetherimid/siloxanocopolymer into question.

Such polysiloxanes are < in the commerce; RTI ID=14.1> erhältlich. < /RTI> Bottom suitable boron compounds fall both inorganic and organic boron compounds, for example < RTI ID=14.2> Boric acid, < /RTI> Metal borate, phosphates of the boric acid or perborates, in particular metal borate or perborate, like alkali metal borate (z. B. Sodium or potassium), alkaline earth metal borate (z. B. Calcium, barium or magnesium) or transition metal borate such as zinc borate. Metal borate and perborate preferred in anhydrous form used becomes. The portion of the boron compounds of the moulding compositions according to invention preferably lies, related to the amount at borons, within the range of 0,02 to 5, preferred from 0,2 to 1 Gew. - %.

As component) contain G < RTI ID=14.3> erfindungsgemässen < /RTI> Moulding compositions 0 to 30, preferably 0 to 25 and in particular 0 to 20 < RTI ID=14.4> Gew. - % < /RTI> glass or carbon fibers, Kohlenstoffbrillen, < RTI ID=14.5> Soot, < /RTI> Glass spheres or cut glass or their mixtures.

Essential one is < with Glas-und carbon fibers of the component G) the middle; RTI ID=14.6> Faserlänge < /RTI> < RTI ID=14.7> 150 < /RTI> in the granulates or in the Form < RTI ID=14.8> body, < /RTI> since these mouldings exhibit a very good mechanical characteristic profile, if the middle < RTI ID=14.9> Faserlänge < /RTI> < RTI ID=14.10> 150 < /RTI> 150 to 400 < RTI ID=14.11> pm, < /RTI> preferred 170 to 300 < RTI ID=14.12> pm < /RTI> and in particular 180 to 280 < RTI ID=14.13> pm < /RTI> < RTI ID=14.14> amounts to. As middle fiber length 150 generally the Wert < becomes; /RTI> referred, with that 50% of the fibers a smaller and 50 < RTI ID=14.15> % < /RTI> the fibers a larger length than < RTI ID=14.16> 150-Wert < /RTI> exhibit. Generally the used fibers a diameter < within the range of 6 to 20; RTI ID=14.17> pm. < /RTI>

The glass fibers < RTI ID=14.18> können < /RTI> both alkali-metalliferous and free of alkali metals its. With the use of glass fibers < RTI ID=14.19> können < /RTI> this to the better compatibility with the thermoplastic with a size, z. B. Polyurethane or epoxy and a coupling agent, z. B. Aminotrialkoxsilanen < RTI ID=14.20> ausgerüstet < /RTI> sein. In < RTI ID=14.21> übrigen < /RTI> < RTI ID=14.22> können < /RTI> also under component C) < RTI ID=14.23> aufgeführten < /RTI> Simple materials for application come.

The Incorporation of these glass fibers can take place both in the form of short glass fibers and in the form of endless strands (Rovings).

The other < RTI ID=14.24> können < /RTI> as component G) Kohlenstoffbrillen and/or.

- hollow-fray as well as to soot to the use come. The bottom Russian are < electrical; RTI ID=14.25> leitfähige < /RTI> < RTI ID=14.26> Russe < /RTI> preferred, in particular, even if the molding material < or; RTI ID=14.27> Formkörper < /RTI> electrostatic Lackier-bzw. < RTI ID=14.28> Färbeprozess < /RTI> to be subjected is. One gives the conductive soot to favourable way with a temperature of min destens < RTI ID=15.1> 300 C < /RTI> as in the EP-A 0,685,527 described to dazzle from polyphenylene ether and polyamide. The amount < on; RTI ID=15.2> Russ < /RTI> preferred lies within the range of 1 to 7 < RTI ID=15.3> Gew. - % < /RTI> besonders bevorzugt von 2 bis 5 Gew.-%. The polymer blends according to invention with < RTI ID=15.4> leitfähigem < /RTI> In particular a conductance small 106 ohms certain exhibit soot as ingredient according to ISO 3167.

< RTI ID=15.5> Ausserdem < /RTI> < RTI ID=15.6> können < /RTI> Glass spheres and/or. Microspheres or cut glass as component G) in < RTI ID=15.7> erfindungsgemässen < /RTI> Moulding compositions incorporated become. Such materials as additions < RTI ID=15.8> für < /RTI> Polymer blends are < the person skilled in the art; RTI ID=15.9> hinlänglich < /RTI> known and in the commerce < RTI ID=15.10> erhältlich. < /RTI>

▲ top As additives and processing aid H) come < RTI ID=15.11> Oxidation timer, < /RTI> Hitze-und light stabilisers, Gleit-und releasing from form means as well as coloring means such as dyes or pigments and softeners in amounts from 0 to 10, preferred 0 to 5 < RTI ID=15.12> Gew. - % < /RTI> in question. Also low molecular or high molecular polymers come as additives into considerations, whereby polyethylene wax is particularly preferred as lubricants.

< RTI ID=15.13> Oxidationsverzögerer < /RTI> and Hitze-bzw. < RTI ID=15.14> Heat stabilizers, < /RTI> those the thermoplastic moulding compositions according to invention added are < RTI ID=15.15> can, < /RTI> are z. B. Halides of metals of the group of I of the periodic system, z. B. Sodium, potassium, lithium halides, if necessary. In connection with < RTI ID=15.16> Copper (I) - halides, < /RTI> z. B. Chlorides, bromides or iodides. Further < RTI ID=15.17> können < /RTI> Zinc fluoride and zinc chloride used become. Furthermore steric hindered phenols, Hydrochinone, substituted members of this group and mixtures of these compounds, are preferably in concentrations up to 1 Gew. - %, related to the weight of the mixture, more insertable.

Examples < RTI ID=15.18> für < /RTI> Licht-bzw. < RTI ID=15.19> W-Stabilisatoren < /RTI> are various substituted resorcinols, salicylates, benzotriazoles and benzophenones, which < generally in amounts up to 2; RTI ID=15.20> Gew. - % < /RTI> are used.

Materials to < RTI ID=15.21> Erhöhung < /RTI> - powders, - fray to the shield against electromagnetic waves, like metal flakes, metallized < RTI ID=15.22> Füllstoffe < /RTI> and < RTI ID=15.23> leitfähige < /RTI> Polymere < RTI ID=15.24> können < /RTI> likewise along-used becomes.

Gleit-und releasing from form means, which usually < in amounts up to; RTI ID=15.25> 1 < /RTI> < RTI ID=15.26> Gew. - % < /RTI> the thermoplastic mass added, are z become. B. < RTI ID=15.27> Stearic acid, < /RTI> Stearylalkohol, < RTI ID=15.28> Stearinsäurealkylester < /RTI> and - amides as well as esters of the pentaerythritol with langkettigen Fett < RTI ID=15.29> säuren. < /RTI>

Bottom additives fall also stabilisers, which the decomposition of the red phosphorus < as; RTI ID=16.1> Flammenschutzmittel < /RTI> F) prevent in presence of moisture and atmospheric oxygen. As examples compounds of the cadmium, zinc, aluminium, silver, iron, copper, antimony, tin, magnesium, manganese, vanadium, boron, aluminium and titanium are mentioned. Particularly suitable compounds are z. B. Oxides of the metals mentioned, furthermore carbonates or Oxicarbonate, hydroxides as well as salts of organic or inorganic acids such as acetates or phosphates and/or. Hydraulic gene phosphates and sulfates.

[http://www.worldlingo.com/wl/epo/epo.html?SEED=WO9945069&SEED\\_FORMAT=E&ACTION=...](http://www.worldlingo.com/wl/epo/epo.html?SEED=WO9945069&SEED_FORMAT=E&ACTION=...) 2008/06/19



**PCT**WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM  
Internationales BüroINTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE  
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation <sup>6</sup> : C08L 77/00, 71/12, C08K 3/34 // (C08L 77/00, 71:12) (C08L 71/12, 77:00)		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/45069 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 10. September 1999 (10.09.99)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP98/05056 (22) Internationales Anmeldedatum: 10. August 1998 (10.08.98) (30) Prioritätsdaten: 198 09 157.5 5. März 1998 (05.03.98) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): BASF AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-67056 Ludwigshafen (DE). GENERAL ELECTRIC COMPANY [US/US]; One River Road, Schenectady, NY 12345 (US). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): GÖTZ, Walter [DE/DE]; Dhauner Strasse 79, D-67067 Ludwigshafen (DE). GRUTKE, Stefan [DE/DE]; Walter-Bruch-Strasse 3, D-67434 Neustadt (DE). KOEVOETS, Christiaan, Henricus [NL/NL]; Cipresberg 41, NL-4707 DJ Roosendaal (NL). EERSELS, Kristof, Lode, Leo [BE/NL]; Loonberg 12, NL-4617 NX Bergen op Zoom (NL). BASTIAENS, Jozef, Herman, Peter [BE/NL]; Kaatsbaan 48, NL-4611 JX Bergen op Zoom (NL). GOTTSCHALK, Axel [DE/DE]; Hirschhornring 33, D-67435 Neustadt (DE). (74) Gemeinsamer Vertreter: BASF AKTIENGESELLSCHAFT; D-67056 Ludwigshafen (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: AL, AU, BG, BR, BY, CA, CN, CZ, GE, HU, ID, IL, JP, KR, KZ, LT, LV, MK, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, TR, UA, US, eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).  Veröffentlicht Mit internationalem Recherchenbericht.	
(54) Title: POLYAMIDE/POLYPHENYLENE ETHER MOULDING MATERIALS WITH MINERAL FILLING MATERIALS (54) Bezeichnung: POLYAMID/POLYPHENYLENETHER-FORMMASSEN MIT MINERALISCHEN FÜLLSTOFFEN (57) Abstract <p>Thermoplastic moulding materials, containing the following essential components: A) 15-84.5 wt. % thermoplastic polyamide, B) 15-84.5 wt. % polyphenylene ether, C) 0.5 - 10 wt. % kaolinite, dickite, nacrite, halloysite, wollastonite, enstatite, diopside or spodumen, D) 0-20 wt. % of at least one polymer modifying the resistance to impact of the polyphenylene ether phase, E) 0-10 wt. % of at least one polymer modifying the resistance to impact of the polyamide phase, F) 0-20 wt. % flameproofing agent, G) 0-30 wt. % glass or carbon fibres, carbon fibrils, carbon black, glass beads or cut glass and H) 0-10 wt. % other additives or processing agents.</p> (57) Zusammenfassung <p>Thermoplastische Formmassen, enthaltend als wesentliche Komponenten: A) 15 bis 84,5 Gew.-% eines thermoplastischen Polyamids, B) 15 bis 84,5 Gew.-% eines Polyphenylenethers, C) 0,5 bis 10 Gew.-% Kaolinit, Dickit, Nakrit, Halloysit, Wollastonit, Enstatit, Diopsit oder Spodumen, D) 0 bis 20 Gew.-% mindestens eines die Polyphenylenetherphase schlagzähmodifizierenden Polymeren, E) 0 bis 10 Gew.-% mindestens eines die Polyamidphase schlagzähmodifizierenden Polymeren, F) 0 bis 20 Gew.-% eines Flammenschutzmittels, G) 0 bis 30 Gew.-% Glas- oder Kohlenstoffasern, Kohlenstofffibrillen, Ruß, Glaskugeln oder Schnittglas und H) 0 bis 10 Gew.-% weitere Zusatzstoffe oder Verarbeitungshilfsmittel.</p>			

# **LEDIGLICH ZUR INFORMATION**

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Letland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Ver.igte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Polyamid/Polyphenylenether-Formmassen mit mineralischen Füllstoffen

## 5 Beschreibung

Die vorliegende Erfindung betrifft thermoplastische Formmassen, enthaltend als wesentliche Komponenten

- 10 A) 15 bis 84,5 Gew.-% eines thermoplastischen Polyamids,
- B) 15 bis 84,5 Gew.-% eines Polyphenylenethers,
- C) 0,5 bis 10 Gew.-% Kaolinit, Dickit, Nakrit, Halloysit,  
15 Wollastonit, Enstatit, Diopsit oder Spodumen,
- D) 0 bis 20 Gew.-% mindestens eines die Polyphenylenetherphase schlagzähmodifizierenden Polymeren,
- 20 E) 0 bis 10 Gew.-% mindestens eines die Polyamidphase schlagzähmodifizierenden Polymeren,
- F) 0 bis 20 Gew.-% eines Flammenschutzmittels,
- 25 G) 0 bis 30 Gew.-% Glas- oder Kohlenstoffasern, Kohlenstofffibrillen, Ruß, Glaskugeln oder Schnittglas und
- H) 0 bis 10 Gew.-% weitere Zusatzstoffe oder Verarbeitungshilfsmittel.

30

Des weiteren betrifft die Erfindung die Verwendung dieser Formmassen zur Herstellung von Formkörpern, insbesondere Karosseriebauteilen. Außerdem betrifft die Erfindung die erhaltenen Formkörper.

35

- Blends auf der Basis von Polyamiden und Polyphenylenethern sind für vielfältige Anwendungen bekannt. Das große anwendungstechnische Interesse an dieser Blendklasse basiert unter anderem darauf, daß die Einzelkomponenten sich in ihren vorteilhaften Eigenschaften sehr gut ergänzen. Während thermoplastische Polyphenylenetherpolymerisate u.a. über eine relativ gute Wärmeformbeständigkeit und Dimensionsstabilität, jedoch über eine schlechte Lösungsmittelbeständigkeit und eine hohe Schmelzviskosität verfügen, weisen Polyamidthermoplaste eine gute  
40 Lösungsmittelbeständigkeit und eine gute Verarbeitbarkeit auf.  
45 Polyamide haben hingegen Schwachstellen bei der Wärmeformbeständigkeit und der Dimensionsstabilität. Trotz der positiven

Eigenschaften von Polyamid/Polyphenylenetherblends sind diese für viele Anwendungen in der Regel immer noch unzureichend im Hinblick auf Dimensionsstabilität, Wärmeformbeständigkeit und Steifigkeit. Diese Mängel versucht man beispielsweise dadurch zu beheben, daß man das Blendmaterial mit anorganischen Füllstoffen versetzt. Blends mit faserförmigen oder mit mineralischen Füllstoffen werden zum Beispiel in der WO 85/5372, EP-A 0 260 123, WO 87/5304, EP-A 0 046 040, WO 86/2086 oder DE-A 34 43 154 beschrieben.

10

Gemäß der EP-A 0 375 177 wird einer Polyamid/Polyphenylenethermischung beispielsweise Talk mit einer Partikelgröße von 5,0 µm oder weniger, der bei Erhitzung auf 300°C über einen Zeitraum von 2 Stunden einen Gewichtsverlust von maximal 0,2 Gew.-% zeigt, zugesetzt, um zu Formmassen mit verbesserter Dimensionsstabilität, Oberflächenbeschaffenheit und verbesserter Lösungsmittelbeständigkeit zu gelangen. Allerdings lassen sich Einbußen beim Zähigkeitsverhalten selbst bei nur geringen Füllstoffmengen nicht vermeiden. Mit steigendem Füllstoffgehalt nimmt die Schlagzähigkeit rapide ab. Weiterhin von Nachteil ist, daß zwar mit steigendem Füllstoffanteil die Wärmeformbeständigkeit zunimmt, gleichzeitig die Schlagzähigkeit jedoch stark abnimmt, obgleich bekannt ist, daß mineralische Füllstoffe wie Talk die Schlagzähigkeit weniger stark beeinflussen als Faserfüllstoffe. In diesem Zusammenhang ist es nicht besonders vorteilhaft, daß erst mit steigendem Füllstoffanteil eine verbesserte Dimensionsstabilität verzeichnet wird.

Es wäre somit wünschenswert, auf Polyamid/Polyphenylenether-Formmassen zurückgreifen zu können, die sich bereits bei geringen Füllstoffgehalten durch eine gute Dimensionsstabilität auszeichnen.

Der vorliegenden Erfindung lag daher die Aufgabe zugrunde, thermoplastische Formmassen auf der Basis von Polyamid und Polyphenylenether zur Verfügung zu stellen, die die geschilderten Nachteile nicht oder nur in vermindertem Umfang aufweisen und die bereits bei geringen Füllstoffgehalten über eine gute Dimensionsstabilität verfügen, ohne Einbußen bei der Wärmeformbeständigkeit oder der Zähigkeit zu zeigen.

Demgemäß wurden die eingangs beschriebenen thermoplastischen Formmassen gefunden. Weiterhin wurde die Verwendung dieser Formmassen zur Herstellung von Formkörpern, insbesondere von großflächigen Karosserieaußenteilen gefunden. Außerdem wurden die erhaltenen Formkörper gefunden.

## 3

Besonders bevorzugt sind solche thermoplastischen Formmassen, die

- A) 20 bis 70 Gew.-% eines thermoplastischen Polyamids,
- 5 B) 20 bis 70 Gew.-% eines Polyphenylenethers,
- C) 1,0 bis 8,0 Gew.-% Kaolinit oder Wollastonit,
- D) 2,5 bis 20 Gew.-% mindestens eines die Polyphenylenetherphase  
10 schlagzähmodifizierenden Polymeren,
- E) 0 bis 8 Gew.-% mindestens eines die Polyamidphase schlagzäh-  
modifizierenden Polymeren,
- 15 F) 1 bis 15 Gew.-% eines Flammenschutzmittels,
- G) 0 bis 20 Gew.-% Glas- oder Kohlenstofffasern, Kohlen-  
stofffibrillen, Ruß, Glaskugeln oder Schnittglas und
- 20 H) 0 bis 5 Gew.-% weitere Zusatzstoffe oder Verarbeitungshilfs-  
mittel

enthalten, wobei die Summe der Gew.-% der Komponenten A) -H) 100 ergibt.

25

Die als Komponente A) in den thermoplastischen Formmassen ent-  
haltenen Polyamide sind an sich bekannt und umfassen die halb-  
kristallinen und amorphen Harze mit Molekulargewichten (Gewichts-  
mittelwerten) von mindestens 5000, die gewöhnlich als Nylon be-

30 zeichnet werden. Solche Polyamide und Verfahren zu deren Her-  
stellung sind z.B. in den amerikanischen Patentschriften  
US-2,071,250, US-2,071,251, US-2,130,523, US-2,130,948,  
US-2,241,322, US-2,312,606 und US-3,393,210 beschrieben.

35 Die Polyamide können z.B. durch Kondensation äquimolarer Mengen  
einer gesättigten oder einer aromatischen Dicarbonsäure mit 4 bis  
12 Kohlenstoffatomen, beispielsweise Adipinsäure, Sebacinsäure,  
Azelaäure, 1,12-Dodekandicarbonsäure, Terephthal- und Iso-  
phthälsäure, mit einem gesättigten oder aromatischen Diamin,  
40 welches bis 14 Kohlenstoffatome aufweist, also zum Beispiel  
1,6-Diaminohexan, 1,4-Diaminobutan, m-Xyldiamin, Di-(4-amino-  
phenyl)methan, Di-(4-aminocyclohexyl)methan, 2,2-Di-(4-amino-  
phenyl)propan oder 2,2-Di-(4-aminocyclohexyl)propan, erhalten  
werden. Des weiteren können geeignete Polyamide durch Konden-  
45 sation von  $\omega$ -Aminocarbonsäuren oder durch Polyaddition von

4

Lactamen unter Ringöffnung zu zum Beispiel Polycaprolactam (bspw. Nylon 6) oder Polylauryllactam hergestellt werden.

Beispiele für geeignete Polyamide sind Polycaprolactam (Nylon 6),  
5 Polyhexamethylenadipinsäureamid (Nylon 66), Polyhexamethylen-  
azelainsäureamid (Nylon 69), Polyhexamethylensebacinsäureamid  
(Nylon 610), Polyhexamethylendodecandisäureamid (Nylon 612), die  
durch Ringöffnung von Lactamen erhaltenen Polyamide wie Poly-  
caprolactam, Polylaurinsäurelactam, ferner Poly-11-aminoundecan-  
10 säure und ein Polyamid aus (Di(p-aminocyclohexyl)-methan- und  
Dodecandisäure.

Es ist auch möglich, gemäß der Erfindung Polyamide zu verwenden,  
die durch Copolykondensation von zwei oder mehr der obengenannten  
15 Polymeren oder ihrer Komponenten hergestellt worden sind, z.B.  
Copolymere aus Adipinsäure, Isophthalsäure oder Terephthalsäure  
und Hexamethylen-diamin oder Copolymere aus Caprolactam,  
Terephthalsäure und Hexamethylen-diamin. Bevorzugt werden lineare  
Polyamide mit einem Schmelzpunkt über 200°C.

20 Bevorzugte Polyamide sind Polyhexamethylenadipinsäureamid, Poly-  
hexamethylensebacinsäureamid und Polycaprolactam sowie Poly-  
amid 6/6T und Polyamid 66/T, besonders bevorzugt ist Polyhexa-  
methylenadipinsäureamid.

25 Die Polyamide weisen im allgemeinen eine Viskositätszahl im  
Bereich von 90 bis 350 ml/g auf, bestimmt nach ISO 307 an einer  
0,5 gew.-%igen Lösung in 96 %iger Schwefelsäure bei 23°C. Dieses  
entspricht in der Regel einem Molekulargewicht von etwa 15 000  
30 bis 45 000 g/mol. Polyamide mit einer Viskositätszahl im Bereich  
von 110 bis 240 ml/g werden bevorzugt verwendet.

Außerdem seien noch Polyamide erwähnt, die z.B. durch Kondensation  
von 1,4-Diaminobutan mit Adipinsäure unter erhöhter  
35 Temperatur erhältlich sind (Polyamid-4,6). Herstellungsverfahren  
für Polyamide dieser Struktur sind z.B. in den EP-A 38 094,  
EP-A 38 582 und EP-A 39 524 beschrieben. Polyamid-4,6 sowie Poly-  
amid 6/6T und Polyamid 66/T werden bevorzugt mit einem Triamin-  
gehalt kleiner 0,5 Gew.-%, bezogen auf die Komponente A), einge-  
40 setzt.

Mischungen verschiedener Polyamide sowie Polyamidcopolymere sind  
ebenfalls geeignet.

45

## 5

Der Anteil der Polyamide A) an den erfindungsgemäßen Formmassen beträgt 15 bis 84,5, vorzugsweise 20 bis 70 und insbesondere 25 bis 60 Gew.-%.

- 5 In einer bevorzugten Ausführungsform der erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen werden Polyamide mit einem Aminoendgruppengehalt im Bereich von 40 bis 80, bevorzugt von 40 bis 70 und insbesondere von 45 bis 65  $\mu\text{eq/g}$  eingesetzt. Weiterhin bevorzugt sind solche Polyamide mit einer Restfeuchte kleiner 0,4 %
- 10 insbesondere kleiner 0,25 %. Der Restfeuchtegehalt läßt sich z.B. nach dem Dampfdruckverfahren (ISO 960 D) oder der elektro-nisch gesteuerten Karl-Fischer-Titration (ISO-Entwurf 1988) bestimmen.
- 15 Als Komponente B) wird erfindungsgemäß wenigstens ein an sich bekannter Polyphenylenether (PPE) verwendet, wobei es sich um Homo-, Co- oder Pfropfcopolymere handeln kann. Insbesondere sind dies Verbindungen auf Basis von substituierten, insbesondere disubstituierten Polyphenylenethern, wobei der Ethersauerstoff
- 20 der einen Einheit an den Benzolkern der benachbarten Einheit gebunden ist. Vorzugsweise werden in 2- und/oder 6-Stellung zum Sauerstoffatom substituierte Polyphenylenether verwendet. Als Beispiele für Substituenten sind Halogenatome, wie Chlor oder Brom, und Alkylreste mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, die vorzugs-
- 25 weise kein  $\alpha$ -ständiges tertiäres Wasserstoffatom aufweisen, z.B. Methyl-, Ethyl-, Propyl- oder Butylreste, zu nennen. Die Alkylreste können wiederum durch Halogenatome, wie Chlor oder Brom, oder durch eine Hydroxylgruppe substituiert sein. Weitere Beispiele möglicher Substituenten sind Alkoxyreste, vorzugsweise mit
- 30 bis zu 4 Kohlenstoffatomen, wie Methoxy, Ethoxy, n-Propoxy und n-Butoxy, oder gegebenenfalls durch Halogenatome und/oder Alkylgruppen substituierte Phenylreste. Ebenfalls geeignet sind Copolymere verschiedener Phenole, beispielsweise Copolymere von 2,6-Dimethylphenol und 2,3,6-Trimethylphenol. Selbst-
- 35 verständlich können auch Gemische verschiedener Polyphenylenether eingesetzt werden. Die Polyphenylenether B) sind in den erfindungsgemäßen Formmassen in einer Menge von 15 bis 84,5, bevorzugt 20 bis 70 und insbesondere 25 bis 60 Gew.-% enthalten. Geeignete Polyphenylenether und Verfahren zu
- 40 deren Herstellung werden zum Beispiel in den US-Patentschriften US- 3,306,874, US 3,306,875, US 3,257,357 und US 3,257,358 beschrieben.

Beispiele für geeignete Polyphenylenether sind

- 45 Poly(2,6-dilauryl-1,4-phenylenether),  
Poly(2,6-diphenyl-1,4-phenylenether), Poly(2,6-dimethoxy-1,4-phenylenether), Poly(2,6-diethoxy-1,4-phenylenether),

## 6

- Poly(2-methoxy-6-ethoxy-1,4-phenylenether), Poly(2-ethyl-6-stearyloxy-1,4-phenylenether), Poly-(2,6-dichlor-1,4-phenylenether), Poly(2-methyl-6-phenyl-1,4-phenylenether), Poly(2,6-dibenzyl-1,4-phenylenether), Poly(2-ethoxy-1,4-phenylenether),
- 5 Poly(2-chlor-1,4-phenylenether), Poly(2,5-dibrom-1,4-phenylenether). Bevorzugt werden Polyphenylenether eingesetzt, bei denen die Substituenten Alkylreste mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen sind; als besonders geeignet haben sich Poly(2,6-dialkyl-1,4-phenylenether) erwiesen, wie Poly(2,6-dimethyl-1,4-phenylenether),
- 10 Poly(2,6-diethyl-1,4-phenylenether), Poly(2-methyl-6-ethyl-1,4-phenylenether), Poly(2-methyl-6-propyl-1,4-phenylenether), Poly(2,6-dipropyl-1,4-phenylenether oder Poly(2-ethyl-6-propyl-1,4-phenylenether). Besonders bevorzugt wird Poly(2,6-dimethyl-1,4-phenylenether) eingesetzt, insbesondere solches mit einer in-
- 15 trinsischen Viskosität im Bereich von 0,30 bis 0,60 dl/g (gemessen in Toluol bei 25°C und einer Konzentration von 0,6 g/100 ml).

Unter Polyphenylenether im Sinne der Erfindung sollen auch solche verstanden werden, die mit Monomeren, wie Fumarsäure, Zitronensäure, Maleinsäure oder Maleinsäureanhydrid modifiziert

20 sind. Üblicherweise wird der Polyphenylenether durch Einbau mindestens einer Carbonyl-, Carbonsäure-, Säureanhydrid-, Säureamid-, Säureimid, Carbonsäureester-, Carboxylat-, Amino-, Hydroxyl-, Epoxi-, Oxazolin-, Urethan-, Harnstoff-, Lactam- oder

25 Halogenbenzylgruppe modifiziert, so daß eine hinreichende Verträglichkeit mit dem zweiten Polymeren der Mischung, dem Polyamid, gewährleistet ist. Derartige Polyphenylenether sind u.a. in der WO-A 86/02086, WO-A- 87/00540, EP-A-0 222 246, EP-A-0 223 116 und EP-A-0 254 048 beschrieben.

30

- Die Modifizierung wird im allgemeinen durch Umsetzung eines Polyphenylenethers mit einem Modifizierungsmittel, das mindestens eine der oben genannten Gruppen enthält, in Lösung (WO-A 86/2086), in wäßriger Dispersion, in einem Gasphasenverfahren (EP-A-25 200)
- 35 oder bevorzugt in der Schmelze, gegebenenfalls in Gegenwart von geeigneten vinylaromatischen Polymeren oder Schlagzähmodifiern, durchgeführt, wobei wahlweise Radikalstarter zugegen sein können.

Besonders geeignete Modifizierungsmittel sind Maleinsäure, Methyl-

40 maleinsäure, Itaconsäure, Tetrahydrophthalsäure, deren Anhydride und Imide, Fumarsäure, die Mono- und Diester dieser Säuren, z.B. mit C<sub>1</sub>- bis C<sub>8</sub>-Alkanolen, die Mono- oder Diamide dieser Säuren wie N-Phenylmaleinimid, Maleinhydrazid, das Säurechlorid des Trimelithsäureanhydrids, Benzol-1,2-dicarbonensäureanhydrid-4-carbon-

45 säure-essigsäureanhydrid, Chlorethanoylsuccinaldehyd, Chlorformylsuccinaldehyd, Zitronensäure und Hydroxysuccinsäure. Bevorzugt sind als Modifier Fumarsäure und Zitronensäure, besonders

7

bevorzugt ist Zitronensäure, insbesondere wasserfreie Zitronensäure.

Die Komponente B) kann ausschließlich aus nicht modifiziertem  
5 Polyphenylenether, ausschließlich aus modifiziertem Polyphenylenether oder aus einer beliebigen Mischung von nicht modifiziertem und modifiziertem Polyphenylenether bestehen. Hinsichtlich der physikalischen Eigenschaften der Polyphenylenether werden bevorzugt solche eingesetzt, die ein mittleres Molekulargewicht  $M_w$   
10 (Gewichtsmittel) von 8000 bis 70000, vorzugsweise 12000 bis 60000 und insbesondere 25000 bis 50000 g/mol, aufweisen. Dies entspricht einer Grenzviskosität von etwa 0,18 bis 0,9, vorzugsweise von 0,25 bis 0,7 und insbesondere von 0,39 bis 0,6 dl/g, gemessen in Chloroform bei 25°C nach DIN 53 726.

15

Die Bestimmung der Molekulargewichtsverteilung erfolgt im allgemeinen mittels Gelpermeationschromatographie (Shodex-Trennsäule 0,8 x 50 cm des Typs A 803, A 804 und A 805 mit Tetrahydrofuran (THF) als Elutionsmittel bei Raumtemperatur). Die Lösung der PPE-  
20 Proben in THF erfolgt unter Druck bei 110°C, wobei 0,16 ml einer 0,25 gew.-%igen Lösung injiziert werden. Die Detektion erfolgt im allgemeinen mit einem UV-Detektor. Die Säulen werden mit PPE-Proben geeicht, deren absolute Molekulargewichtsverteilungen über eine GPC-Laser-Lichtstreuungskombination bestimmt werden können.

25

Zwecks Kompatibilisierung von Polyamid und Polyphenylenether kann man ebenfalls, wie in WO 85/05372 oder EP-A 0 024 120 beschrieben, Mischungen dieser Polymere mit funktionalisierten ungesättigten organischen Verbindungen versetzen.

30

Unter die Offenbarung der vorliegenden Erfindung fallen demgemäß selbstverständlich auch Mischungen aus Polyamid und Polyphenylenethern, denen eine ungesättigte organische Verbindung mit mindestens einer Carbonsäure-, Anhydrid-, Amid-, Imid-, Ester-, Amin-  
35 oder Hydroxyfunktionalität beigegeben wurde. Bevorzugt sind organische Verbindungen mit mindestens einer Carbonsäure-, Ester- oder Amidfunktionalität. Die genannten organischen Verbindungen verfügen des weiteren über mindestens eine ungesättigte funktionelle Einheit. Hierunter sind sowohl Kohlenstoff/Kohlenstoff-  
40 Dreifachbindungen als auch -Zweifachbindungen zu verstehen, wobei letztere endständig, zwei-, drei- oder vierfach substituiert sein können. Als geeignete Verbindungen kommen z.B. in Frage Zitronensäure, Äpfelsäure oder Agaricinsäure in wasserfreier sowie in hydratisierter Form, Acetylzitrat, Mono- und/oder Distearylzitrat,  
45 N,N'-Diethylzitronensäureamid, N,N'-Dipropylzitronensäureamid, N-Phenylzitronensäureamid, N-Dodecylzitronensäureamid, N,N'-Dodecylzitronensäureamid oder N-Dodecyläpfelsäureamid. Unter unge-

## 8

sättigte organische Verbindungen mit Carbonsäurefunktionalität fallen insbesondere auch deren Salze. Beispielhaft seien die Ammoniumsalze sowie bevorzugt die Alkali- und Erdalkalimetallsalze wie Calciumzitrat oder Kaliumzitrat sowie die Calcium- und Kaliumsalze der Äpfelsäure genannt.

Die vorgenannte funktionalisierte ungesättigte organische Verbindung setzt man vorzugsweise in Mengen im Bereich von 0,05 bis 4 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen, ein.

Als Komponente C) enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 0,5 bis 10, bevorzugt 1 bis 8, besonders bevorzugt 1,5 bis 6,5 und insbesondere 2 bis 6 Gew.-% an Kaolinit, Dickit, Nakrit, Halloysit, Wollastonit, insbesondere  $\beta$ -Wollastonit, Enstatit, Diopsit oder Spodumen. Besonders bevorzugt sind Kaolinit und Wollastonit. Unter Kaolinit im Sinne der vorliegenden Erfindung wird auch Kaolin mit einem Gesamtanteil an Glimmer, Feldspat und/oder Quarz nicht größer als 10 Gew.-%, bezogen auf die eingesetzte Menge an Kaolin, verstanden. Die Minerale Kaolinit, Dickit, Nakrit und Halloysit werden bevorzugt in calcinierter Form verwendet, d.h. diese Stoffe werden einem Temperungsprozeß, beispielsweise bei etwa 800°C, über einen Zeitraum von mehreren Stunden unterzogen, bevor sie für die Herstellung der erfindungsgemäßen Formmasse eingesetzt werden. Es können auch beliebige Mischungen der vorgenannten Minerale eingesetzt werden, also z.B. Kaolinit und  $\beta$ -Wollastonit oder Kaolinit und Enstatit.

Besonders bevorzugt werden die unter die Komponente C) fallenden Verbindungen in beschichteter Form ("gecoatet") eingesetzt. Für die Beschichtung kann im Grunde auf aus der Glasfasertechnologie bekannte Schlichtematerialien zurückgegriffen werden. Geeignete Schlichtematerialien sind z.B. wäßrige Stärkeemulsionen, Schmelzöle, wäßrige Dispersionen oberflächenaktiver Substanzen sowie siliziumhaltige Verbindungen wie Vinylsilane, Alkyltrimethoxysilane, Aminosilane oder Trimethoxysilane. Als besonders vorteilhaft haben sich Aminosilane erwiesen. Diese können, ebenso wie die vorgenannten Silanschichten, zusätzlich auch über Urethan-, Acrylat- oder Epoxyfunktionalitäten verfügen. Ebenso können die Silanschichten ein Gemisch mit Urethan-, Acrylat- oder Epoxyfunktionalitäten enthaltenden Verbindungen vorliegen. Mit Aminosilanschichten behandelte Mineralverbindungen der Komponente C) sind kommerziell erhältlich. Mit diesen Schichten behandeltes Wollastonit oder Kaolinit kann z.B. über die Firma Quarzwerke oder die Firma ECC (Englisch China Clay) bezogen werden.

## 9

Sehr gute Resultate im Hinblick auf Dimensionsstabilität und Wärmeformbeständigkeit werden insbesondere dann erzielt, wenn die Teilchen- bzw. Korngröße der verwendeten Füllmaterialien nicht zu hohe Werte annimmt. In der Regel werden die Verbindungen der Komponente C) mit einer oberen Teilchen- bzw. Korngröße  $d_{95\%}$  < 30  $\mu\text{m}$ , bevorzugt < 20  $\mu\text{m}$  und insbesondere < 15  $\mu\text{m}$  eingesetzt. Als mittlere Korngröße  $d_{50\%}$  wird günstigerweise ein Wert < 10 und insbesondere < 5  $\mu\text{m}$  gewählt.

10 Als Schlagzähmodifizier für die Polyphenylenetherphase (Komponente D) werden schlagzähmodifizierende Kautschuke in Anteilen von 0 bis 20, bevorzugt 2,5 bis 20 und vorzugsweise in Anteilen von 4 bis 15 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der Formmasse, eingesetzt.

15

Als Komponente D) können natürliche und/oder synthetische Kautschuke eingesetzt werden. Neben Naturkautschuk sind als Schlagzähmodifizier z.B. Polybutadien, Polyisopren oder Mischpolymerisate des Butadiens und/oder Isoprens mit Styrol und anderen Comonomeren, die eine Glasübergangstemperatur, bestimmt nach K.H. Illers und H. Breuer, Kolloidzeitschrift 190 (1), 16-34 (1963), von -100°C bis +25°C, vorzugsweise unter 0°C aufweisen, geeignet. Außerdem können entsprechend hydrierte Produkte eingesetzt werden.

25 Bevorzugte Schlagzähmodifizier D) sind Blockpolymere, insbesondere Zwei- oder Dreiblockcopolymere aus Vinylaromaten und Dienen. Schlagzähmodifizier dieses Typs sind bekannt. In der DE-AS 1 932 234, der DE-AS 2 000 118 sowie der DE-OS 2 255 930 sind unterschiedlich aufgebaute vinylaromatische und Dienblöcke umfassende elastomere Blockcopolymerisate beschrieben. Die Verwendung entsprechender hydrierter Blockcopolymerisate gegebenenfalls im Gemisch mit der nicht hydrierten Vorstufe als Schlagzähmodifizier ist beispielsweise beschrieben in der DE-OS 2 750 515, DE-OS 2 434 848, DE-OS 3 038 551, EP-A-0 080 666 und WO 83/01254. Auf die Offenbarung obiger Druckschriften wird hiermit ausdrücklich Bezug genommen. In Frage kommen in diesem Zusammenhang u.a. auch hydrierte Styrol-Butadien-Dreiblockcopolymere (SEBS), wie das Handelsprodukt Kraton® 1651, oder hydrierte Styrol-Isopren-Zweiblockcopolymere (SEP), wie das Handelsprodukt Kraton® 1701 (bei 30 des Produkte der Fa. Shell). Selbstverständlich können auch Mischungen von Zweiblock- und Dreiblockcopolymeren eingesetzt werden.

Als die Polyamidphase schlagzähmodifizierende Polymere (Komponente E) kommen zum Beispiel Copolymere des Ethylens mit Propylen (EP-Kautschuke) sowie gegebenenfalls mit einem konjugierten Dien (EPDM-Kautschuke), wobei der Ethylengehalt bevorzugt 45 und ins-

## 10

besondere 50 Gew.-% (bezogen auf die Komponente E) beträgt, in Frage. Derartige Schlagzähmodifizier sind allgemein bekannt, weshalb für weitere Einzelheiten hier auf die Publikation von Cartasegna in Kautschuk, Gummi, Kunststoffe 39, 1186-91 (1986) verwiesen sei.

- Die die Zähigkeit von Polyamiden verbessernden Kautschuke weisen im allgemeinen einen elastomeren Anteil mit einer Glastemperatur kleiner -10°C, vorzugsweise kleiner -30°C auf und enthalten mindestens eine funktionelle Gruppe, die mit dem Polyamid reagieren kann. Geeignete funktionelle Gruppen sind beispielsweise Carbonsäure-, Carbonsäureanhydrid-, Carbonsäureester-, Carbonsäureamid-, Carbonsäureimid-, Amino-, Hydroxyl-, Epoxid-, Urethan- und Oxazolingruppen. Als Kautschuke, die die Zähigkeit von Polyamiden erhöhen, seien zum Beispiel folgende genannt:
- EP- beziehungsweise EPDM-Kautschuke, die mit den vorstehenden funktionellen Gruppen gepfropft wurden. Geeignete Pfropfreagentien sind beispielsweise Maleinsäureanhydrid, Itaconsäure, Acrylsäure, Glycidylacrylat und Glycidylmethacrylat. Diese Monomeren können in der Schmelze oder in Lösung, gegebenenfalls in Gegenwart eines Radikalstarters wie Cumolhydroperoxid, auf das Polymere aufgepfropft werden. Weiterhin seien Copolymere von  $\alpha$ -Olefinen mit (Meth)acrylaten und/oder Vinylestern genannt. Bei den  $\alpha$ -Olefinen handelt es sich üblicherweise um Monomere mit 2 bis 8 C-Atomen, vorzugsweise Ethylen und Propylen. Als Comonomere haben sich Alkylacrylate oder Alkylmethacrylate, die sich von Alkoholen mit 1 bis 8 C-Atomen, vorzugsweise von Ethanol, Butanol oder Ethylhexanol ableiten, sowie reaktive Comonomere wie Acrylsäure, Methacrylsäure, Maleinsäure, Maleinsäureanhydrid oder Glycidyl(meth)acrylat und weiterhin Vinylester, insbesondere Vinylacetat, als geeignet erwiesen. Mischungen verschiedener Comonomere können ebenfalls eingesetzt werden. Als besonders geeignet haben sich Copolymere des Ethylens mit Ethyl- oder Butylacrylat und Acrylsäure und/oder Maleinsäureanhydrid erwiesen. Die Copolymeren können in einem Hochdruckprozeß bei einem Druck von 400 bis 4500 bar oder durch Pfropfen der Comonomeren auf das Poly- $\alpha$ -Olefin hergestellt werden. Der Anteil des  $\alpha$ -Olefins an dem Copolymeren liegt im allgemeinen Bereich von 99,95 bis 55 Gew.-%.
- Als weitere Gruppe geeigneter Elastomere sind Kern-Schale-Pfropfkautschuke zu nennen. Hierbei handelt es sich um in Emulsion hergestellte Pfropfkautschuke, die aus mindestens einem harten und einem weichen Bestandteil bestehen. Unter einem harten Bestandteil versteht man üblicherweise ein Polymerisat mit einer Glastemperatur von mindestens 25°C, unter einem weichen Bestandteil ein Polymerisat mit einer Glastemperatur von höchstens 0°C. Diese Produkte weisen eine Struktur aus einem Kern und mindestens

## 11

einer Schale auf, wobei sich die Struktur durch die Reihenfolge der Monomerzugabe ergibt. Die weichen Bestandteile leiten sich unter anderem von Butadien, Isopren, Alkylacrylaten oder Alkylmethacrylaten und gegebenenfalls weiteren Comonomeren ab. Als geeignete Comonomere sind hier zum Beispiel Styrol, Acrylnitril und vernetzende oder pfropfkaktive Monomere mit mehr als einer polymerisierbaren Doppelbindung wie Diallylphthalat, Divinylbenzol, Butandiolldiacrylat oder Triallyl(iso)cyanurat zu nennen. Die harten Bestandteile leiten sich unter anderem von Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und deren Copolymerisaten ab, wobei hier als Comonomere vorzugsweise Acrylnitril, Methacrylnitril und Methylmethacrylat aufzuführen sind.

Bevorzugte Kern-Schale-Pfropfkautschuke enthalten einen weichen Kern und eine harte Schale oder einen harten Kern, eine erste weiche Schale und mindestens eine weitere harte Schale. Der Einbau von funktionellen Gruppen wie Carbonyl-, Carbonsäure-, Säureanhydrid-, Säureamid-, Säureimid-, Carbonsäureester-, Amino-, Hydroxyl-, Epoxi-, Oxazolin-, Urethan-, Harnstoff-, Lactam- oder Halogenbenzylgruppen erfolgt hierbei vorzugsweise durch den Zusatz geeigneter funktionalisierter Monomere bei der Polymerisation der letzten Schale. Geeignete funktionalisierte Monomere sind beispielsweise Maleinsäure, Maleinsäureanhydrid, Mono- oder Diester der Maleinsäure, tert.-Butyl(meth)acrylat, Acrylsäure, Glycidyl(meth)acrylat und Vinyloxazolin. Der Anteil an Monomeren mit funktionellen Gruppen beträgt im allgemeinen 0,1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 0,25 bis 15 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des Kern-Schale-Pfropfkautschuks. Das Gewichtsverhältnis von weichen zu harten Bestandteilen beträgt im allgemeinen 1:9 bis 9:1, bevorzugt 3:7 bis 8:2.

Derartige Kautschuke, die die Zähigkeit von Polyamiden erhöhen, sind an sich bekannt und beispielsweise in der EP-A-0 208 187 beschrieben.

35

Eine weitere Gruppe von geeigneten Schlagzähmodifiern sind thermoplastische Polyesterelastomere. Unter Polyesterelastomeren werden dabei segmentierte Copolyetherester verstanden, die langkettige Segmente, die sich in der Regel von Poly(alkylen)etherglykolen, und kurzkettige Segmente, die sich von niedermolekularen Diolen und Dicarbonsäuren ableiten, enthalten. Derartige Produkte sind an sich bekannt und in der Literatur, zum Beispiel in der US 3,651,015, beschrieben. Auch im Handel sind entsprechende Produkte unter den Bezeichnungen Hytrel® (Du Pont), Arnitel® (Akzo) und Pelprene® erhältlich.

## 12

Selbstverständlich können auch Mischungen verschiedener Kautschuke eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Formmassen können weiterhin Flammenschutz-  
5 mittel F) in Mengen von 0 bis 20 Gew.-%, bevorzugt von 1 bis 15 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der erfindungsgemäßen Formmasse, enthalten.

Es können alle bekannten Flammenschutzmittel in Betracht, z.B.  
10 Polyhalogendiphenyl, Polyhalogendiphenylether, Polyhalogenphthal säure und ihre Derivate, Polyhalogenoligo- und -polycarbonate, wobei die entsprechenden Bromverbindungen besonders wirksam sind.

Beispiele hierfür sind Polymere des 2,6,2',6'-Tetrabrombis-  
15 phenols A der Tetrabromphthalsäure, des 2,6-Dibromphenols und 2,4,6-Tribromphenols und deren Derivate.

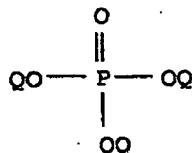
Ein bevorzugtes Flammschutzmittel F) ist elementarer Phosphor. In der Regel kann der elementare Phosphor mit z.B. Polyurethan  
20 oder anderen Aminoplasten phlegmatisiert oder geccoatet werden. Außerdem sind Konzentrate von rotem Phosphor z.B. in einem Polyamid, Elastomeren oder Polyolefin geeignet.

Besonders bevorzugt ist 1,2,3,4,7,8,9,10,13,13,14,14-Dodeca-  
25 chloro-1,4,4a,5,6,6a,7,10,10a,11,12,12a-dodecahydro-1,4:7,10-dimethanodibenzo(a,e)-cyclooctan (Dechlorane®plus, Occidental Chemical Corp.), gegebenenfalls zusammen mit einem Synergisten, z.B. Antimontrioxid.

30 Weitere Phosphorverbindungen wie organische Phosphorsäure, Phosphonate, Phosphinite, Phosphinoxide, Phosphine, Phosphite oder Phosphate sind ebenfalls bevorzugt. Als Beispiel sei Triphenylphosphinoxid genannt. Dieses kann allein oder vermischt mit Hexabrombenzol oder einem chlorierten Biphenyl oder rotem  
35 Phosphor und, wahlweise, Antimontrioxid verwendet werden.

Typische bevorzugte Phosphorverbindungen sind solche der folgenden allgemeinen Formel

40



45 worin Q für Wasserstoff oder für gleiche oder verschiedene Kohlenwasserstoffreste oder Halogenkohlenwasserstoffreste, wie Alkyl, Cycloalkyl, Aryl, alkylsubstituiertes Aryl und aryl-

## 13

substituiertes Alkyl steht, vorausgesetzt, daß mindestens einer der für Q stehenden Reste ein Arylrest ist. Beispiele solcher geeigneter Phosphate sind z.B. die folgenden: Phenylbisdodecylphosphat, Phenylbisneopentylphosphat, Phenylethylenhydrogenphosphat, Phenyl-bis-(3,5,5'-trimethylhexylphosphat), Ethyldiphenylphosphat, 2-Ethylhexyldi(p-tolyl)phosphat, Diphenylhydrogenphosphat, Bis-(2-ethylhexyl)phenylphosphat, Tri(nonylphenyl)phosphat, Phenylmethylhydrogenphosphat, Di(dodecyl)-p-tolylphosphat, Tricresylphosphat, Triphenylphosphat, Dibutylphenylphosphat und Diphenylhydrogenphosphat. Die bevorzugten Phosphate sind solche, bei denen jedes Q Aryl ist. Das am meisten bevorzugte Phosphat ist Triphenylphosphat. Weiter ist die Kombination von Triphenylphosphat mit rotem Phosphor bevorzugt.

15 Bevorzugt sind weiterhin auch Hydrochinon- oder Resorcindiphenyldiphosphate sowie Verbindungen, die durch Reaktion von Bisphenol A bzw. S mit Triphenylphosphat unter Basenkatalyse erhalten werden.

20 Geeignet sind auch Mischungen von Phosphinoxiden mit Phosphaten. Exemplarisch seien Mischungen aus Triphenylphosphinoxid-Triphenylphosphat oder Trixylylphosphat, Tricyclohexylphosphinoxid und Triphenylphosphat, Tris-(cyanoethyl)phosphinoxid und Triphenylphosphat, Tris-(n-octyl)-phosphinoxid und Triphenylphosphat genannt.

Als Flammenschutzmittel sind schließlich auch solche Verbindungen geeignet, die Phosphor-Stickstoff-Bindungen enthalten, wie Phosphonnitrilchlorid, Phosphorsäureesteramide, Phosphorsäureesteramine, Phosphorsäureamide, Phosphonsäureamide, Phosphinsäureamide, Tris(aziridinyl)-phosphinoxid oder Tetrakis(hydroxymethyl)phosphoniumchlorid. Diese entflammungshemmenden Additive sind größtenteils im Handel erhältlich.

35 Weitere, halogenhaltige Flammenschutzmittel sind Tetrabrombenzol, Hexachlorbenzol und Hexabrombenzol sowie halogenierte Polystyrole und Polyphenylenether.

Auch die in der DE-A 19 46 924 beschriebenen halogenierten Phthalimide können ebenfalls verwendet werden. Von diesen hat insbesondere N,N'-Ethylenbistetra-bromphthalimid Bedeutung erlangt.

Weiterhin können als Flammenschutzmittel polymere Siloxanverbindungen oder Borverbindungen, wie in der EP-A 0 714 951 beschrieben, eingesetzt werden. Als siliziumhaltige Flammenschutzmittel kommen solche aus der Gruppe der Siloxancopolymere, zum Beispiel Poly-

## 14

phenylenether/- oder Polyetherimid/siloxancopolymere in Frage. Derartige Polysiloxane sind im Handel erhältlich. Unter geeignete Borverbindungen fallen sowohl anorganische als auch organische Borverbindungen, beispielsweise Borsäure, Metallborate, Phosphate 5 der Borsäure oder Perborate, insbesondere Metallborate oder -perborate, wie Alkalimetallborate (z.B. Natrium oder Kalium), Erdalkalimetallborate (z.B. Calcium, Barium oder Magnesium) oder Übergangsmetallborate wie Zinkborat. Die Metallborate und -perborate werden bevorzugt in wasserfreier Form eingesetzt. Der Anteil der 10 Borverbindungen an den erfindungsgemäßen Formmassen liegt vorzugsweise, bezogen auf die Menge an Bor, im Bereich von 0,02 bis 5, bevorzugt von 0,2 bis 1 Gew.-%.

Als Komponente G) enthalten die erfindungsgemäßen Formmassen 0 15 bis 30, vorzugsweise 0 bis 25 und insbesondere 0 bis 20 Gew.-% Glas- oder Kohlenstoff-Fasern, Kohlenstofffibrillen, Ruß, Glaskugeln oder Schnittglas oder deren Mischungen.

Wesentlich ist bei den C<sub>3</sub>- und Kohlenstofffasern der Komponente G) die mittlere Faserlänge l<sub>50</sub> im Granulat oder im Formkörper, da diese Formkörper ein sehr gutes mechanischen Eigenschaftsprofil aufweisen, wenn die mittlere Faserlänge l<sub>50</sub> 150 bis 400 µm, bevorzugt 170 bis 300 µm und insbesondere 180 bis 280 µm beträgt. Als mittlere Faserlänge l<sub>50</sub> wird im allgemeinen der Wert 25 bezeichnet, bei dem 50 % der Fasern eine kleinere und 50 % der Fasern eine größere Länge als der l<sub>50</sub>-Wert aufweisen. Im allgemeinen haben die verwendeten Fasern einen Durchmesser im Bereich von 6 bis 20 µm.

30 Die Glasfasern können sowohl alkalimetallhaltig als auch frei von Alkalimetallen sein. Bei der Verwendung von Glasfasern können diese zur besseren Verträglichkeit mit dem Thermoplasten mit einer Schlichte, z.B. Polyurethan oder Epoxid und einem Haftvermittler, z.B. Aminotrialkoxisilanen ausgerüstet sein. Im übrigen 35 können auch die unter Komponente C) aufgeführten Schlichtematerialien zur Anwendung kommen.

Die Einarbeitung dieser Glasfasern kann sowohl in Form von Kurzglasfasern als auch in Form von Endlossträngen (Rovings) erfolgen. 40 gen.

Des weiteren können als Komponente G) Kohlenstofffibrillen bzw. -hohlfasern sowie Ruß zum Einsatz kommen. Unter den Rußen sind elektrisch leitfähige Ruße bevorzugt, insbesondere auch dann, 45 wenn die Formmasse oder der Formkörper einem elektrostatischen Lackier- bzw. Färbeprozess unterworfen werden soll. Vorteilhafterweise gibt man den leitfähigen Ruß bei einer Temperatur von min-

## 15

destens 300°C wie in der EP-A 0 685 527 beschrieben zum Blend aus Polyphenylenether und Polyamid. Die Menge an Ruß liegt bevorzugt im Bereich von 1 bis 7 Gew.-%, besonders bevorzugt von 2 bis 5 Gew.-%. Die erfindungsgemäßen Polymermischungen mit leitfähigem Ruß als Bestandteil weisen insbesondere einen Durchgangswiderstand kleiner  $10^6 \text{ Ohm} \cdot \text{cm}$ , bestimmt nach ISO 3167, auf.

Außerdem können Glaskugeln bzw. Mikrokugeln oder Schnittglas als Komponente G) in die erfindungsgemäßen Formmassen eingearbeitet werden. Derartige Materialien als Zusätze für Polymermischungen sind dem Fachmann hinlänglich bekannt und im Handel erhältlich.

Als Zusatzstoffe und Verarbeitungshilfsmittel H) kommen Oxidationsverzögerer, Hitze- und Lichtstabilisatoren, Gleit- und Entformungsmittel sowie Färbemittel wie Farbstoffe oder Pigmente und Weichmacher in Mengen von 0 bis 10, bevorzugt 0 bis 5 Gew.-% in Frage. Auch niedermolekulare oder hochmolekulare Polymere kommen als Zusatzstoffe in Betracht, wobei Polyethylenwachs als Gleitmittel besonders bevorzugt ist.

20

Oxidationsverzögerer und Hitze- bzw. Wärmestabilisatoren, die den erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen zugesetzt werden können, sind z.B. Halogenide von Metallen der Gruppe I des Periodensystems, z.B. Natrium-, Kalium-, Lithium-Halogenide, ggf. in Verbindung mit Kupfer-(I)-Halogeniden, z.B. Chloriden, Bromiden oder Iodiden. Weiterhin können Zinkfluorid und Zinkchlorid verwendet werden. Ferner sind sterisch gehinderte Phenole, Hydrochinone, substituierte Vertreter dieser Gruppe und Mischungen dieser Verbindungen, vorzugsweise in Konzentrationen bis zu 1 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht der Mischung, einsetzbar.

30

Beispiele für Licht- bzw. UV-Stabilisatoren sind verschiedene substituierte Resorcine, Salicylate, Benzotriazole und Benzophenone, die im allgemeinen in Mengen bis zu 2 Gew.-% eingesetzt werden.

35

Materialien zur Erhöhung der Abschirmung gegen elektromagnetische Wellen, wie Metallflocken, -pulver, -fasern, metallbeschichtete Füllstoffe und leitfähige Polymere können ebenfalls mitverwendet werden.

40

Gleit- und Entformungsmittel, die in der Regel in Mengen bis zu 1 Gew.-% der thermoplastischen Masse zugesetzt werden, sind z.B. Stearinsäure, Stearylalkohol, Stearinsäurealkylester und -amide sowie Ester des Pentaerythrits mit langkettigen Fettsäuren.

45

## 16

Unter Zusatzstoffe fallen auch Stabilisatoren, die die Zersetzung des roten Phosphors als Flammenschutzmittel F) in Gegenwart von Feuchtigkeit und Luftsauerstoff verhindern. Als Beispiele seien Verbindungen des Cadmiums, Zinks, Aluminiums, Silbers, Eisens, Kupfers, Antimons, Zinns, Magnesiums, Mangans, Vanadiums, Bors, Aluminiums und Titans genannt. Besonders geeignete Verbindungen sind z.B. Oxide der genannten Metalle, ferner Carbonate oder Oxicarbonate, Hydroxide sowie Salze organischer oder anorganischer Säuren wie Acetate oder Phosphate bzw. Hydrogenphosphate und Sulfate.

Die Herstellung der erfindungsgemäßen Formmassen erfolgt zweckmäßigerweise durch Mischen der Komponenten bei Temperaturen im Bereich von 250 bis 320°C in üblichen Mischvorrichtungen, wie Knetern, Banbury-Mischern oder Ein- oder Zweischneckenextrudern. Vorzugsweise wird ein Zweischneckenextruder eingesetzt. Um eine möglichst homogene Formmasse zu erhalten, ist eine intensive Durchmischung notwendig. Die Reihenfolge des Mischens der Komponenten kann variiert werden, es können zwei oder gegebenenfalls mehrere Komponenten vorgemischt werden, oder es können auch alle Komponenten gemeinsam abgemischt werden. Es hat sich als vorteilhaft herausgestellt, den Füllstoff (Komponente C) zusammen mit dem Polyamid (Komponente A) zu vermengen, z.B. mittels Extrusion, und in Form eines Polyamid/Füllstoff-Masterbatches mit den weiteren Komponenten, wie beschrieben, abzumischen.

Aus den erfindungsgemäßen Formmassen lassen sich z.B. durch Spritzguß oder Extrusion Formkörper herstellen, die sich durch eine besonders gute Dimensionsstabilität bei gleichzeitig gutem Zähigkeits- und Wärmeformbeständigkeitsverhalten auszeichnen.

Die erfindungsgemäßen Formmassen eignen sich sehr gut zur Herstellung von Formteilen aller Art, z.B. durch Spritzguß oder Extrusion. Die erfindungsgemäßen Formmassen eignen sich zum Beispiel im Automobilbau für die Herstellung von Karosserieteilen oder auch elektrischen Bauteilen.

Die Erfindung wird anhand der nachfolgenden Beispiele näher erläutert.

40

Beispiele:

Die Einzelkomponenten A) bis D) der erfindungsgemäßen thermoplastischen Formmassen wurden auf einem Zweischneckenextruder (ZSK 53 der Fa. Werner & Pfleiderer) bei Temperaturen im Bereich von 270 bis 310°C gemischt, aufgeschmolzen, extrudiert, anschließend granuliert und getrocknet. Der Extruder besteht aus

## 17

insgesamt 9 Zonen mit folgendem Temperaturprofil (Zone 0-8): Kalt-280-300-290-290-280-270-200-310°C. Die Komponenten B), b) und D) wurden in Zone 0, die Komponenten A) und C) als Masterbatch (hergestellt auf einem Extruder ZSK 40 bei 280°C) in Zone 5 des 5 Zweischneckenextruders zudosiert. Das getrocknete Granulat wurde mittels Spritzguß zu den entsprechenden Formkörpern verarbeitet.

Der thermische Längenausdehnungskoeffizient (CTE) wurde nach DIN 53 752 (Verfahren A) bei kontinuierlicher Aufheizung an zwei 10 Probekörpern (10 mm x 10 mm x 4 mm) in Längs- und Querrichtung bestimmt. Um Orientierungseffekte auszuschließen, wurden jeweils zwei Meßzyklen durchgeführt. In der nachfolgenden Tabelle wird der CTE-Mittelwert (Längsrichtung) der Prüfkörper im zweiten Meßlauf bei einer Temperatur im Bereich von 140 bis 180°C angegeben.

## 15

Die Schädigungsarbeit W-T wurde nach DIN 53443 bei -30°C bestimmt.

Die Reißdehnung wurde im Zugversuch nach ISO 527 ermittelt.

20 Es wurden die folgenden Komponenten eingesetzt:

## Komponente A:

Polyamid 66 mit einer Viskositätszahl nach ISO 307 von 125, einem 25 Amino-Endgruppengehalt von 49 µeq/g und einer Restfeuchte von 0,2 %.

## Komponente B:

30 Poly(2,6-dimethyl-1,4-phenylenether) mit einer mittleren Molmasse (Gewichtsmittel) von 29000 g/mol bestimmt mittels Gelpermeationschromatographie (GPC) in CHCl<sub>3</sub> gegen einen Polystyrolstandard.

## Komponente b:

35 Zitronensäure (wasserfrei)

## Komponente C1:

Talkum mit einer Dichte von 2,77 g/ml und folgender Teilchengrößenverteilung (in Gew.-%): 100 % < 20 µm, 99 % < 10 µm, 40 85 % < 5 µm, 60 % < 3 µm, 43 % < 2 µm (Micro Talc i.T. Extra, Fa. Norwegian Talc)

18

**Komponente C2:**

Wollastonit mit Aminosilan-Schlichte, einer Schüttdichte (DIN 53 468) von 0,58 g/ml, einer oberen Korngröße  $d_{95\%}$  von 13  $\mu\text{m}$  und einer mittleren Korngröße  $d_{50\%}$  von 3,5  $\mu\text{m}$  (Tremin 283/600 AST, 5 Fa. Quarzwerke)

**Komponente C3:**

Kalziniertes Kaolin mit Aminosilan-Schlichte und einer Dichte von 2,6 g/ml sowie folgender Teilchengrößenverteilung:  
10 88 Gew.-% < 10  $\mu\text{m}$  und 52,5 % < 2  $\mu\text{m}$  (Polarite 102 A, Fa. ECC)

**Komponente D1:**

hydriertes Styrol-Butadien-Dreiblockcopolymer (SEBS) mit einem Styrolgehalt von 32 Gew.-%, einer Shore A-Härte von 75 und einer  
15 Glastemperatur der Weichphase von -42°C (Kraton 1651, Fa. Shell).

**Komponente D2:**

hydriertes Styrol-Isopren-Zweiblockcopolymer (SEP) mit einem Styrolgehalt von 37 Gew.-%, einer Shore A-Härte von 72 und einer  
20 Glastemperatur der Weichphase von -42°C (Kraton 1701, Fa. Shell).

Die Zusammensetzungen der Formmassen (in Gew.-Anteilen) und die Ergebnisse der Prüfungen sind den nachfolgenden Tabellen zu entnehmen.

25

Tabelle 1: Vergleichsversuche mit Talk (C1) als Füllstoff

Vergleichsbeispiel	1	2	3	4	5	6
Komponente A	48,0	48,0	48,0	48,0	48,0	48,0
30 Komponente B	36,0	36,0	36,0	36,0	36,0	36,0
Komponente b	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
Komponente C1	0	2	4	6	8	10
Komponente D1	7	7	7	7	7	7
35 Komponente D2	8	8	8	8	8	8
<b>Meßergebnisse</b>						
$C_p \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$	154	149	144	137	131	123
$\eta_{-30^\circ\text{C}} \text{ [Nm]}$	41	39	38	34	23	15
40 Dehnung (nom.) [%]	43	40	37	31	27	24

45

19

Tabelle 2: Thermoplastische Formmassen mit Wollastonit (C2) als Füllstoff (erfindungsgemäß)

	Beispiel	7	8	9	10	11	12
5	Komponente A	48,0	48,0	48,0	48,0	48,0	48,0
	Komponente B	36,0	36,0	36,0	36,0	36,0	36,0
	Komponente b	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
	Komponente C2	0	2	4	6	8	10
10	Komponente D1	7	7	7	7	7	7
	Komponente D2	8	8	8	8	8	8
	Meßergebnisse						
	CTE [ $10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ]	154	146	135	122	114	105
	W-T (-30°C) [Nm]	41	55	59	50	32	18
15	Dehnung (nom.) [%]	43	53	55	51	40	33

Tabelle 3: Thermoplastische Formmassen mit Kaolin als Füllstoff (C3) (erfindungsgemäß)

20	Beispiel	13	14	15	16	17	18
	Komponente A	48,0	48,0	48,0	48,0	48,0	48,0
	Komponente B	36,0	36,0	36,0	36,0	36,0	36,0
	Komponente b	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0	1,0
25	Komponente C3	0	2	4	6	8	10
	Komponente D1	7	7	7	7	7	7
	Komponente D2	8	8	8	8	8	8
	Meßergebnisse						
	CTE [ $10^{-6} \text{ K}^{-1}$ ]	154	148	144	136	129	120
30	W-T (-30°C) [Nm]	41	65	68	61	36	10
	Dehnung (nom.) [%]	43	49	53	47	39	27

35

40

45

## Patentansprüche

1. Thermoplastische Formmassen, enthaltend als wesentliche Kom-  
5 ponenten
- A) 15 bis 84,5 Gew.-% eines thermoplastischen Polyamids,
- B) 15 bis 84,5 Gew.-% eines Polyphenylenethers,
- 10 C) 0,5 bis 10 Gew.-% Kaolinit, Dickit, Nakrit, Halloysit, Wollastonit, Enstatit, Diopsit oder Spodumen,
- D) 0 bis 20 Gew.-% mindestens eines die Polyphenylenether-  
15 phase schlagzähmodifizierenden Polymeren,
- E) 0 bis 10 Gew.-% mindestens eines die Polyamidphase schlagzähmodifizierenden Polymeren,
- 20 F) 0 bis 20 Gew.-% eines Flammenschutzmittels,
- G) 0 bis 30 Gew.-% Glas- oder Kohlenstoffasern, Kohlenstofffibrillen, Ruß, Glaskugeln oder Schnittglas und
- 25 H) 0 bis 10 Gew.-% weitere Zusatzstoffe oder Verarbeitungshilfsmittel.
2. Thermoplastische Formmassen nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß sie
- 30 A) 20 bis 70 Gew.-% eines thermoplastischen Polyamids,
- B) 20 bis 70 Gew.-% eines Polyphenylenethers,
- 35 C) 1,0 bis 8,0 Gew.-% Kaolinit oder Wollastonit,
- D) 2,5 bis 20 Gew.-% mindestens eines die Polyphenylenetherphase schlagzähmodifizierenden Polymeren,
- 40 E) 0 bis 8 Gew.-% mindestens eines die Polyamidphase schlagzähmodifizierenden Polymeren,
- F) 1 bis 15 Gew.-% eines Flammenschutzmittels,
- 45 G) 0 bis 20 Gew.-% Glas- oder Kohlenstoffasern, Kohlenstofffibrillen, Ruß, Glaskugeln oder Schnittglas und

H) 0 bis 5 Gew.-% weitere Zusatzstoffe oder Verarbeitungshilfsmittel

5           enthalten, wobei die Summe der Gew.-% der Komponenten A)-H) 100 ergibt.

3.   Thermoplastische Formmassen nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, daß Polyamide mit einem Aminoendgruppengehalt im Bereich von 40 bis 80 µeq/g eingesetzt werden.  
10

4.   Thermoplastische Formmassen nach den Ansprüchen 1 bis 3, dadurch gekennzeichnet, daß Polyamide mit einer Restfeuchte, bestimmt nach dem Dampfdruckverfahren gemäß ISO 960 D, kleiner 0,4 % eingesetzt werden.  
15

5.   Thermoplastische Formmassen nach den Ansprüchen 1 bis 4, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente B) ein Poly(2,6-dialkyl-1,4-phenylenether) eingesetzt wird.  
20

6.   Thermoplastische Formmassen nach den Ansprüchen 1 bis 5, dadurch gekennzeichnet, daß die Komponente C) in mit Schlichtematerialien beschichteter Form eingesetzt wird.

25 7.   Verwendung der Formmassen gemäß den Ansprüchen 1 bis 6 zur Herstellung von Formkörpern.

8.   Formkörper, erhältlich aus den thermoplastischen Formmassen gemäß den Ansprüchen 1 bis 6 als wesentliche Komponente.  
30

35

40

45

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 98/05056

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 6 C08L77/00 C08L71/12 C08K3/34 //(C08L77/00.71:12).  
(C08L71/12.77:00)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 6 C08L C08K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP 0 528 581 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO) 24 February 1993 see claim 1; examples 3-6	1-8
X	EP 0 183 195 A (BASF AG) 4 June 1986 see column 3, line 39 - line 48; claim 1; example 1 & DE 34 43 154 A (BASF AG) cited in the application	1-8
X	EP 0 400 418 A (BASF AG) 5 December 1990 see column 13, line 6 - line 30; claims 1,3,8	1-8
X	DE 39 29 590 A (BASF AG) 7 March 1991 see page 7, line 35 - line 39; claim 1	1-8
	-/-	

☒ Further documents considered in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

Special categories of documents:

"A" document defining the prior art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to a first disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published on or after the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken into account

"Y" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"Z" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

1 December 1998

Date of mailing of the international search report

08/12/1998

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5618 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel: (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Hoffmann, K

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No  
PCT/EP 98/05056

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<p>EP 0 375 177 A (SUMITOMO CHEMICAL CO)  27 June 1990  cited in the application  see page 7, line 13 - line 14; claim 1  -----</p>	1-8

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/05056

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
EP 0528581 A	24-02-1993	JP 5065410 A DE 69214562 D DE 69214562 T	19-03-1993 21-11-1996 20-03-1997
EP 0183195 A	04-06-1986	DE 3443154 A JP 61130368 A	28-05-1986 18-06-1986
EP 0400418 A	05-12-1990	DE 3917324 A	29-11-1990
DE 3929590 A	07-03-1991	EP 0416430 A	13-03-1991
EP 0375177 A	27-06-1990	JP 2163158 A JP 2715499 B CA 2002526 A DE 68921170 D US 5086105 A	22-06-1990 18-02-1998 15-06-1990 23-03-1995 04-02-1992

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/05056

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C08L77/00 C08L71/12 C08K3/34 //(C08L77/00.71:12),  
(C08L71/12,77:00)

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK.

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C08L C08K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP 0 528 581 A (MITSUBISHI GAS CHEMICAL CO) 24. Februar 1993 siehe Anspruch 1; Beispiele 3-6	1-8
X	EP 0 183 195 A (BASF AG) 4. Juni 1986 siehe Spalte 3, Zeile 39 - Zeile 48; Anspruch 1; Beispiel 1 & DE 34 43 154 A (BASF AG) in der Anmeldung erwähnt	1-8
X	EP 0 400 418 A (BASF AG) 5. Dezember 1990 siehe Spalte 13, Zeile 6 - Zeile 30; Ansprüche 1,3,8	1-8
X	DE 39 29 590 A (BASF AG) 7. März 1991 siehe Seite 7, Zeile 35 - Zeile 39; Anspruch 1	1-8

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen:

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung: die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"Z" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

1. Dezember 1998

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

08/12/1998

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Hoffmann, K

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/05056

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	<p>EP 0 375 177 A (SUMITOMO CHEMICAL CO)  27. Juni 1990  in der Anmeldung erwähnt  siehe Seite 7, Zeile 13 - Zeile 14;  Anspruch 1</p> <p>-----</p>	1-8

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/05056

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 0528581 A	24-02-1993	JP 5065410 A	19-03-1993
		DE 69214562 D	21-11-1996
		DE 69214562 T	20-03-1997
EP 0183195 A	04-06-1986	DE 3443154 A	28-05-1986
		JP 61130368 A	18-06-1986
EP 0400418 A	05-12-1990	DE 3917324 A	29-11-1990
DE 3929590 A	07-03-1991	EP 0416430 A	13-03-1991
EP 0375177 A	27-06-1990	JP 2163158 A	22-06-1990
		JP 2715499 B	18-02-1998
		CA 2002526 A	15-06-1990
		DE 68921170 D	23-03-1995
		US 5086105 A	04-02-1992